トンネル接合型マイクロSQUIDの作製と磁場応答

Fabrication of Tunnel-junction micro-SQUID
and
its Magnetic Response

鈴木 一也

筑波大学第一学群自然学類物理学専攻学士論文

共同実験者 宮川 佳子
指導教員 大塚 洋一 教授

平成17年2月8日

目 次

第 1 章 序論 **7**

第 2 章 理論、背景 **9**

2.1 常伝導体、超伝導体のトンネル効果 9

2.1.1 常伝導体間のトンネル効果 9

2.1.2 超伝導ー常伝導体間のトンネル効果 11

2.1.3 超伝導体間のトンネル効果 12

2.2 ジョセフソン効果、ジョセフソン接合 14

2.2.1 ジョセフソン効果 14

2.2.2 ゲージ不変な位相差 15

2.2.3 RSJ モデル 16

2.3 SQUID 23

2.3.1 基本式 23

2.3.2 自己磁束 LI_{cir} が無視できるとき ($LI_{cir} \ll \Phi_{ext}$) 24

2.3.3 自己磁束 LI_{cir} が無視できないとき ($LI_{cir} \gtrsim \Phi_{ext}$) 24

第 3 章 実験 **27**

3.1 サンプル作製プロセス 27

3.1.1 リソグラフィー技術 27

3.1.2 真空蒸着法 28

3.1.3 エッチング技術 29

3.1.4 SQUID 作製プロセス 30

3.1.5 作製された SQUID の概要 32

3.1.6 微小鉛薄膜の作製 35

3.2 測定系 36

3.2.1 ^{3}He − ^{4}He 希釈冷凍機 36

3.2.2 測定回路 36

第 4 章 結果、考察 **39**

4.1 測定結果 39

4.1.1 電流-電圧特性 39

4.1.2 コンダクタンスの磁場による振動 41

第 5 章 まとめ **45**

付録 A Fermi の黄金律 **47**

付録 B 薄膜超伝導体の諸特性 **49**

付録 C 記号一覧 **53**

図目次

2.1 電圧が印加されている常伝導金属接合のエネルギー準位 (T=0K) と電子の弾性的なトンネル 10
2.2 常伝導金属間のトンネル電流の電圧依存性 10
2.3 トンネル接合で期待される電流-電圧特性 (点線) とクーロンブロッケード 11
2.4 常伝導金属と超伝導金属の間のトンネル電流特性 (模式図) 12
2.5 超伝導状態のエネルギーバンド図 (T=0) 12
2.6 それぞれが超伝導ギャップ Δ_1, Δ_2 を持つ超伝導金属間のトンネル電流特性 (模式図) 13
2.7 二つの超伝導金属が等しい超伝導ギャップ Δ を持つときのトンネル電流特性 (模式図) 13
2.8 超伝導体と常伝導体間トンネル電流のトンネル過程と電流-電圧特性の模式図 (T=0) 13
2.9 準粒子トンネル現象の半導体モデル 14
2.10 力学モデルでポテンシャルに対応する、”U(φ)” しばしば洗濯板ポテンシャルと呼ばれる 17
2.11 ジョセフソン接合の等価回路 19
2.12 規格化されたジョセフソン接合の電流-電圧特性の β_c 依存性。ノイズ電流は無視している。[1] より引用。 19
2.13 雨粒状の Sn を押し付けて作ったジョセフソン接合にマイクロ波 (7.5GHz, 10.0GHz) を放射したときの電流-電圧特性。温度は 2.0K 20
2.14 雨粒状の Sn を押し付けて作ったジョセフソン接合の外観。電圧および電流を測定するための端子 4 本が引き出されている。 21
2.15 ジョセフソン接合に放射するマイクロ波のナンテナ 21
2.16 (a) ジョンソン雑音があるときの電流-電圧特性 (シュミレーション)、C=0 としている。破線は雑音を無視した時の特性。[2] より引用。$\Gamma = 2\pi k_B T/I_c\Phi_0$ である。(b) 低周波電圧雑音スペクトル　[2] より引用 21
2.17 2 つのジョセフソン接合で作られる SQUID の基本構造 (dc-SQUID と呼ばれる)。周回積分の積分路 C。 22
2.18 平均バイアス電流 $\bar{I}$ と循環電流 I_{cir} の概念図。平均バイアス電流は正味の磁束を作らない。 25
2.19 外部磁束 Φ_{ext} による臨界電流 I_{max} の変調 (自己磁束が十分小さい $LI_{cir} \ll \Phi_{ext}$ とき) 26
2.20 外部磁束 Φ_{ext} による臨界電流 I_{max} の変調 (自己磁束が無視できない $LI_{cir} \gtrsim \Phi_{ext}$ のとき)。$\beta = 2LI_c/\Phi_0$ である。[2] より引用。 26

3.1 エリオニクス社製電子線描画装置 ELS-6600 のシステム構成。[3] より引用 28
3.2 HMDS の化学作用 30
3.3 SQUID の描画パターン 33
3.4 電子線リソグラフィーのレジストプロセス 33
3.5 斜め蒸着の模式図 34
3.6 SQUID の SEM 画像 35
3.7 さまざまな形 (●、▲、■) と大きさ (10μm〜1μm) の Pb 薄膜 36
3.8 微細加工した Pb 薄膜の拡大画像 36
3.9 定電圧バイアス回路。電流-電圧特性の測定に使用。 38
3.10 定電流バイアス回路。電流-電圧特性の測定に使用。 38
3.11 定電圧バイアス回路。コンダクタンス振動の測定で使用する。 38

4.1 SQUID の電流-電圧特性 (定電圧バイアス) 40
4.2 SQUID の電流-電圧特性 (定電流バイアス) の磁場依存性 (カラーマップ) 40
4.3 SQUID の電流-電圧特性 (定電流バイアス、-9.7gauss 印加) 40
4.4 SQUID の電流-電圧特性 (定電流バイアス、-11.5gauss 印加) 40
4.5 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンスの変化 (測定全体)。磁場掃印は高磁場から低磁場方向へである。 42
4.6 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンスの変化 (350-400gauss) 42
4.7 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンスの変化 (3810-3885gauss) 42
4.8 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンスの変化 (4990-5040gauss) 42
4.9 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンスの変化 (5205-5240gauss) 42
4.10 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンス振動のフーリエスペクトル 42
4.11 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (測定全体)。磁場掃印は低磁場から高磁場方向へである。 43
4.12 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (300-1100gauss) 43
4.13 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (1500-2400gauss) 43
4.14 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (4800-5500gauss) 43
4.15 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (7600-9900gauss) 43
4.16 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンス振動のフーリエスペクトル (1) 43
4.17 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (測定全体)。磁場掃印は高磁場から低磁場方向へである。 44
4.18 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (200-1000gauss) 44
4.19 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (2200-2700gauss) 44
4.20 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (6000-7800gauss) 44
4.21 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (8100-10000gauss) 44
4.22 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンス振動のフーリエスペクトル (2) 44

B.1 超伝導薄膜の臨界温度の膜厚依存性。(a) Al (●：Chubov *et al.*、○：Townsend *et al.*) (b) In (△：Vogel and Garland) (c) Pb (Strongin *et al.*、△：Caswell *et al.*) (d) Nb (●：Wolf *et al.*) 引用元は [4] を参照のこと。 50
B.2 Al 膜の臨界磁場の膜厚依存性。[5] から引用。 51

第1章

序論

超伝導のコヒーレンス

Josephson 効果は、超伝導現象がマクロスケールにまでクーパー対の位相を保つ現象であることを我々に示した。マクロスケールにまでコヒーレンスが保たれるのは例外的であり、常伝導金属や半導体で電子のコヒーレンスが重要になるのはいわゆるメゾスコピック系と呼ばれる領域においてである[1]。超伝導の強いコヒーレンスを利用した干渉素子が SQUID[2]である。

高感度な磁束センサ -SQUID-

SQUID は超伝導がマクロな領域まで及ぼす波動性と超伝導リングの磁束の量子化を利用した磁束のセンサである。原理的な説明は後でするが、SQUID の超伝導臨界電流は SQUID リングを貫く磁束に対して周期的に振動しその周期は量子磁束 $\Phi_0 = \dfrac{h}{2e} = 2.0679 \times 10^{-15}$Wb となる。磁束密度の振動周期と磁束が貫く面積 (SQUID のリングが囲む面積) をそれぞれ ΔB、S とすれば

$$\Delta B \cdot S = \Phi_0 \tag{1.1}$$

という関係が成り立つ。したがって面積を適当な大きさにとってやれば非常に微弱な磁場を検出することが可能となる。磁束に変換可能な物理量 (例えば電流) の測定にも威力を発揮するので、脳や心臓に流れる電流が作る磁場を測定して逆演算により電流分布を測定するような研究も行われている。この方法なら従来の心電図や脳波電位図と異なり無接触で測定ができる。これは SQUID 応用の一例に過ぎず、代表的な磁化率測定などその応用は物理学、化学、生物学、医学など多岐に及んでいる。

しかし、従来の SQUID 磁束計は磁場に対してずば抜けて優れた感度を持ち合わせていながら、磁場に対して弱いという側面も持っていた。具体的に言うと、SQUID センサー部は数十 gauss の磁場によって臨界電流の振動を失ってしまう。これはジョセフソン接合部分に磁束が入り込んでしまうことによって、特性が変化してしまうためと考えられている。このため実際は、SQUID センサー部分は磁気シールドし、高磁場中の測定試料の磁気的な変化を磁束輸送によって測定している。

本研究の目的

本研究では SQUID 面積が $4\mu\mathrm{m}^2$ 程度のトンネル接合型の dc-SQUID の開発をおこなうとともに[3]、単一ナノ磁性体の物性観測のための周辺技術の考察も目的とする。ジョセフソン接合が小さくなればSQUID が感度をもつ磁場領域も拡大されると予想できる。本論文でいう、マイクロ SQUID とは SQUID ループのスケールが μm オーダーにあるものと定義する。Wernsdorfer は SQUID 面積が $6\mu\mathrm{m}^2$ 程度のブリッジ型[4]SQUID を使用して数 nm 級の Co 微粒子や直径数十 nm、長さ数 μm の Ni 細線の磁化反転を詳細に調べている [6]。トンネル接合型の SQUID ならばブリッジ型に比べ臨界電流が桁違いに小さくなると予想され、消費電力の低減に繋がり、発熱もそれだけ抑えられる可能性がある。

---

[1]マクロな系とメゾスコピック系を分ける境界は位相コヒーレンス長（電子間クーロン相互作用や電子ー格子間相互作用などのエネルギー状態を変化させる非弾性散乱を受けるまでに電子が移動できる平均の距離）が対象としている系の大きさと同程度になるところを指すのが一般的である。非弾性散乱は温度が下がるにつれて受けにくくなるのでメゾスコピック系と呼ばれる系の大きさも温度によって変化し、金属薄膜では数百〜数十 mK で 1μm 程度になる。

[2]Superconducting QUantum Interference Device; 超伝導量子干渉計

[3]$\Delta S = 4\mu m^2$ としたとき ΔB を式 (1.1) から計算すると $\Delta B \sim 5$Gauss となる

[4]超伝導体にくびれ構造をつくり、これをジョセフソン接合とする

第2章

理論、背景

§ 2.1　常伝導体、超伝導体のトンネル効果

2.1.1　常伝導体間のトンネル効果

常伝導体間のトンネル電流

絶縁膜によって隔たれた常伝導金属の接合を考える。絶縁膜が薄くなると電子は量子力学的なトンネル効果によって、絶縁膜を突き抜けて移動することができる。金属 2 に電圧 V を加えた場合、金属 1 と金属 2 の化学ポテンシャルの間に eV のエネルギー差が生じる。このようなトンネルの様子を図 2.1 に示す。

T=0K の場合

金属 1 の $|\vec{\boldsymbol{k}_1}\rangle$ 状態にあった電子が金属 2 の $|\vec{\boldsymbol{k}_2}\rangle$ 状態へトンネルする確率は黄金律により (p.47 からの付録 A 参照)

$$P_T = \frac{2\pi}{\hbar}|\langle\vec{\boldsymbol{k}_2}|\mathcal{H}_T|\vec{\boldsymbol{k}_1}\rangle|^2 N_2(\varepsilon) \tag{2.1}$$

で表すことができる。ここで $\mathcal{H}_T$ はトンネル過程を記述する摂動ハミルトニアン、$N_2(\varepsilon)$ は金属 2 の状態密度、$\varepsilon = \varepsilon_2 - \varepsilon_F = \varepsilon_1 - \varepsilon_F + eV$ である。$|\langle\vec{\boldsymbol{k}_2}|\mathcal{H}_T|\vec{\boldsymbol{k}_1}\rangle| \equiv T_{21}$ とおくと、着目している電子遷移による電流密度は

$$J = \frac{2\pi e}{\hbar A}|T_{21}|^2 N_2(\varepsilon) \tag{2.2}$$

となる。ここで A は接合面積である。したがって、T=0K での全電流はスピンを考慮し弾性的なトンネルのみを考えると

$$I_{nn}(T=0) = \frac{4\pi e}{\hbar}\int_0^{eV} |T_{21}|^2 N_1(\varepsilon - eV)N_2(\varepsilon)d\varepsilon \tag{2.3}$$

で記述できる。

T≠ 0 K の場合

T ≠ 0 K の場合には、フェルミ-ディラックの分布関数を考慮する必要があるであろう。まず、スピンを考慮した金属 1 から金属 2 への電流 I_{12} は

$$I_{12} = \frac{4\pi e}{\hbar}\int_{-\infty}^{\infty} |T_{21}|^2 N_1(\varepsilon - eV)N_2(\varepsilon)f(\varepsilon - eV)[1 - f(\varepsilon)]d\varepsilon \tag{2.4}$$

である。ここで $f(\varepsilon - eV)$ は金属 1 のエネルギー $\varepsilon - eV$ の状態が占有されている確率、$1 - f(\varepsilon)$ は金属 2 のエネルギー ε の状態が空いている確率である。同様に金属 2 から金属 1 への電流密度 I_{21} は

$$I_{21} = \frac{4\pi e}{\hbar}\int_{-\infty}^{\infty} |T_{12}|^2 N_1(\varepsilon - eV)N_2(\varepsilon)f(\varepsilon)[1 - f(\varepsilon - eV)]d\varepsilon \tag{2.5}$$

式 (2.4) と式 (2.5) の差をとり全電流 I_{nn} を計算する。ただしここで遷移確率を $|T_{12}|^2 = |T_{21}|^{2\dagger} \equiv |\mathcal{T}|^2$ とフェルミ面の値で近似する。また電圧 V が十分小さい場合のみを考えることにし状態密度をフェ

ルミ面 $\varepsilon = 0$ での値で近似する。

$$\begin{aligned} I_{nn} &\sim \frac{4\pi e}{\hbar}|\mathcal{T}|^2 N_1(0)N_2(0)\int_{-\infty}^{\infty}[f(\varepsilon - eV) - f(\varepsilon)]d\varepsilon \\ &\sim \frac{4\pi e}{\hbar}|\mathcal{T}|^2 N_1(0)N_2(0)\int_{-\infty}^{\infty}(-eV)\frac{df(\varepsilon)}{d\varepsilon}d\varepsilon \quad (|\varepsilon| \gg e|V| \text{ とした}) \\ &= \frac{4\pi e^2 V}{\hbar}|\mathcal{T}|^2 N_1(0)N_2(0) \end{aligned} \tag{2.6}$$

こうしてトンネル接合のバイアス電圧 V が十分小さいときのオームの法則が導かれる。したがって常伝導金属間のトンネル電流は電圧が小さい領域で図 2.2 のようになる。

$$\begin{cases} I_{nn} = G_T V \\ G_T \equiv R_T^{-1} = \dfrac{4\pi e^2}{\hbar}|\mathcal{T}|^2 N_1(0)N_2(0) \end{cases} \tag{2.7}$$

トンネル接合である条件

次にトンネル過程により生じるエネルギーのぼやけ $\Delta\varepsilon$ を考え、トンネル接合として意味を成すための条件を考えてみる。量子力学の不確定性関係によりトンネル前のエネルギーのぼやけ $\Delta\varepsilon$ とトンネル確率 P_T の間には次のような関係が成り立つ

$$P_T^{-1} \cdot \Delta\varepsilon \gtrsim \hbar \tag{2.8}$$

式 (2.8)、式 (2.7)、および電圧 V が十分小さいとしてエネルギー ε、遷移確率 $|T_{12}|^2$ をフェルミ面 $\varepsilon = 0$ の遷移確率 $|\mathcal{T}|^2$ で置き換えることにより

$$\begin{aligned} N_1(0)\Delta\varepsilon &\gtrsim 2\pi|\mathcal{T}|^2 N_1(0)N_2(0) \\ &= \frac{1}{2\pi}\frac{R_q}{R_T} \end{aligned} \tag{2.9}$$

が得られる。ここで

$$R_q = \frac{h}{2e^2} \sim 12.9\mathrm{k}\Omega \tag{2.10}$$

であり、これは量子抵抗と呼ばれる。さて、式 (2.9) の左辺はトンネルによるエネルギーのぼやけ $\Delta\varepsilon$ 中にある電子状態の数を表し、トンネル接合面の電荷の揺らぎに関係する。$N_1(0)\Delta\varepsilon$ があまりにも大きいときは暗黙の仮定としていた状態密度の考え方が崩れてしまう。

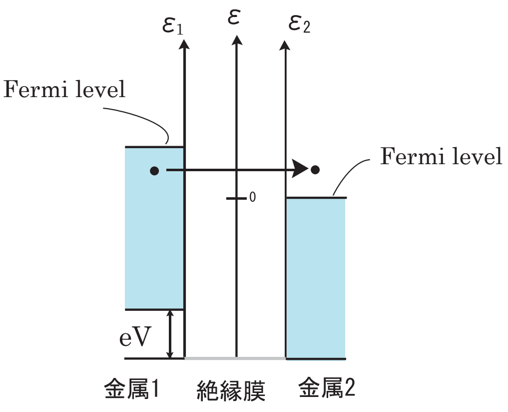


図 2.1: 電圧が印加されている常伝導金属接合のエネルギー準位 (T=0K) と電子の弾性的なトンネル

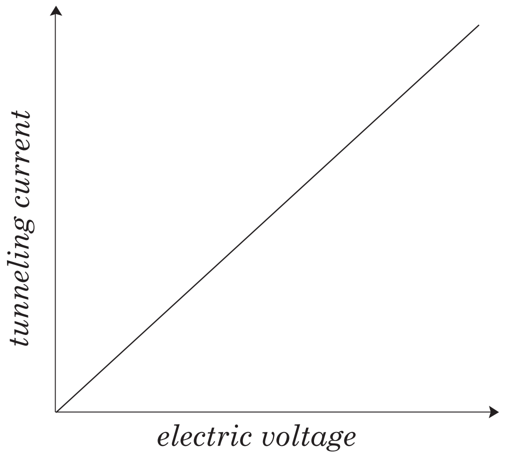


図 2.2: 常伝導金属間のトンネル電流の電圧依存性

クーロンブロッケード

両端子が常伝導である単一のトンネル接合を考え、電子が 1 個トンネルしたとする。電子は素電荷 $e > 0$ をもつ素粒子であるから、電荷の移動に伴う静電エネルギーの変化が生じることになる。トンネル接合の電気容量を C、トンネルが起こる直前に接合面に蓄えられた電荷を Q とするとエネルギー変化 ΔE は

$$\Delta E = \frac{(Q-e)^2}{2C} - \frac{Q^2}{2C} = \frac{e}{C}\left(\frac{e}{2} - Q\right) \tag{2.11}$$

となる。これより、$Q < e/2$ であるときは電子のトンネルはエネルギー的に損であることがわかる。つまり、電子がトンネルするためには、外部からエネルギーをもらわなければならない。したがって、トンネル素子をこのエネルギーに対応する温度よりも十分低い温度で動作させれば、原理的には 1 個の電子といえどトンネルすることはできなくなる (クーロンブロッケード)。逆方向のトンネル過程では、$Q > -e/2$ のときにクーロンブロッケードが起こる。この様子を、図 2.3 に示した。

1 電子の帯電エネルギーを打ち消してしまうのは、熱エネルギーだけではない。量子力学的な揺らぎによってもクーロンブロッケードはかき消されてしまう。クーロンブロッケードは根本的に 1 電子効果であるので、クーロンブロッケードがしっかり観測されるためには式 (2.9) について $N_1(0)\Delta\varepsilon \ll 1$ となることが必要である。これはトンネル抵抗に対して次のような条件をあたえる。

$$R_T \gg R_q \sim 12.9\mathrm{k}\Omega \tag{2.12}$$

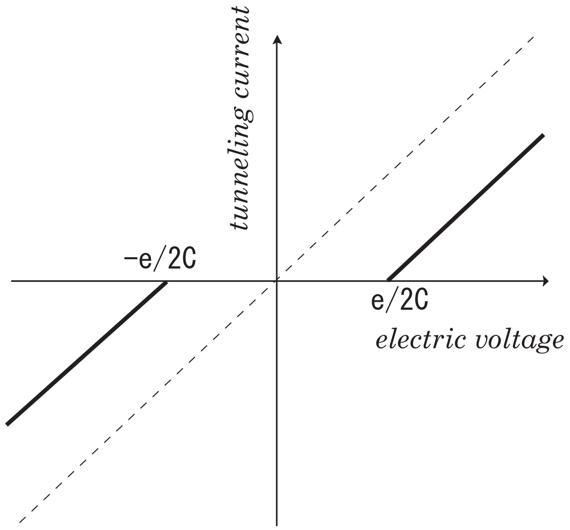


図 2.3: トンネル接合で期待される電流-電圧特性 (点線) とクーロンブロッケード

2.1.2 超伝導－常伝導体間のトンネル効果

超伝導－常伝導体間のトンネル電流

1960 年、Giaever は一方の金属が超伝導状態になると、$T \neq 0$ で図 2.4 に示すようなトンネル電流特性を示すことを見出した [7, 8]。すなわち、電流はエネルギーギャップ Δ に対応する電圧 Δ/e まではほとんど流れず、Δ/e のところで急激に流れ出すのである。

これを理解するために、まず超伝導状態のエネルギー準位を考える。基底状態は、すべての電子が対を形成し、同一のエネルギー状態に凝縮している状態である[1]。励起状態は準粒子状態であり、

[1] Bose-Einstein 凝縮

基底状態の上 $\Delta(T=0$ では$\Delta_0)$ のところからはじめる。このようなエネルギー準位図を図 2.5 に示す。

次に $T=0$ における超伝導体と常伝導体間のトンネル電流を考える。図 2.8 には、超伝導体に電圧 0， Δ_0/e ， $-\Delta_0/e$ の電圧を加えた場合のエネルギー準位図と、電流-電圧特性を示している。電圧 V を増加していって Δ_0/e に達すると、常伝導体中の電子が超伝導体中の準粒子状態に遷移できるようになり、急に電流が流れ始めるようになる (図 2.8, (b))。逆に、電圧 V を減少させていって、$-\Delta_0/e$ に達すると、電子対が壊れて 1 つは準粒子状態に、他の 1 つが常伝導のフェルミ面に遷移できるようになる (図 2.8, (c))。以上の結果、図 2.4 及び図 2.8 の (d) に示されるような電流-電圧特性が得られることになる。

準粒子トンネル電流特性は BCS 理論のエネルギーギャップの直接的証明になっており、エネルギーギャップの値を決定する最も有効な手段である [9, 10, 7]。

2.1.3 超伝導体間のトンネル効果

それぞれエネルギーギャップ $\Delta_1, \Delta_2(\Delta_2 > \Delta_1)$ を持つ 2 つの超伝導体間の $T \neq 0K$ でのトンネル電流特性を模式図を図 2.6 に示す [7, 8]。この特性は、半導体バンド理論の概念で理解することができる。例として電圧 $V=(\Delta_2-\Delta_1)/e$ を金属 1 に印加したときのエネルギー状態密度を図 2.9 に示す。仮に 2 つの金属が等しい超伝導ギャップを持つときは $\Delta_1=\Delta_2=\Delta$ であり、$V=(\Delta_2-\Delta_1)/e$ のピークは打ち消され、$V=2\Delta/e$ で電流は急激に増加する。その様子を図 2.7 に示す。

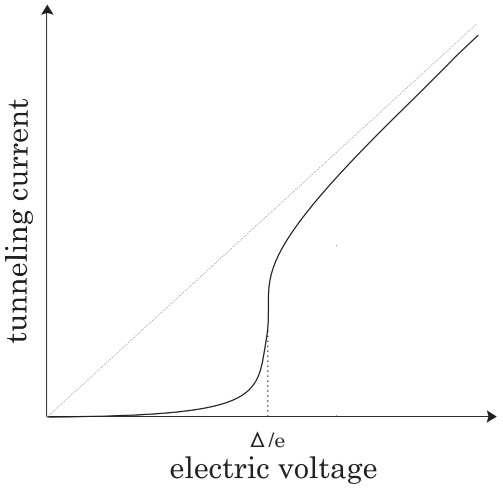


図 2.4: 常伝導金属と超伝導金属の間のトンネル電流特性 (模式図)

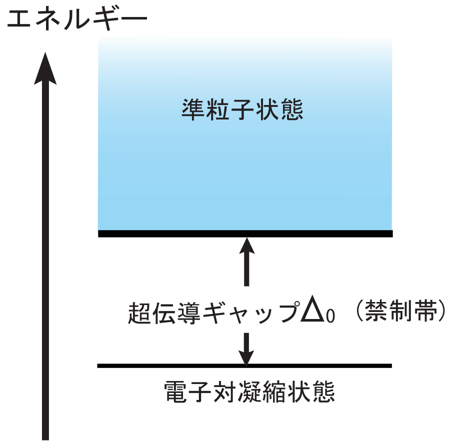


図 2.5: 超伝導状態のエネルギーバンド図 (T=0)

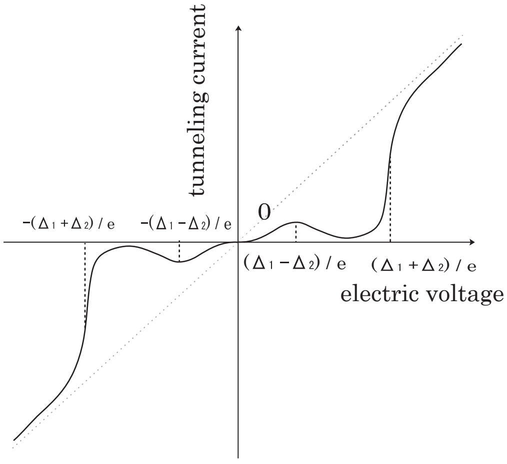


図 2.6: それぞれが超伝導ギャップ Δ_1, Δ_2 を持つ超伝導金属間のトンネル電流特性 (模式図)

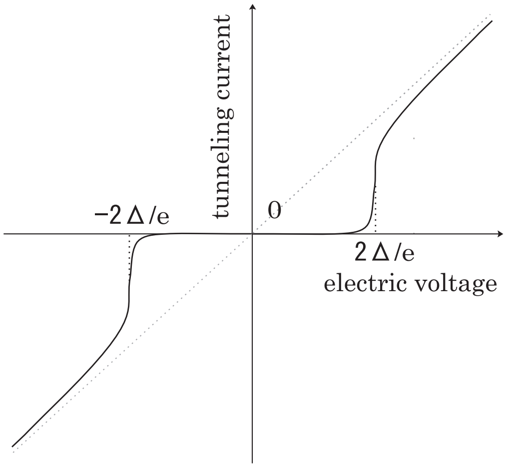


図 2.7: 二つの超伝導金属が等しい超伝導ギャップ Δ を持つときのトンネル電流特性 (模式図)

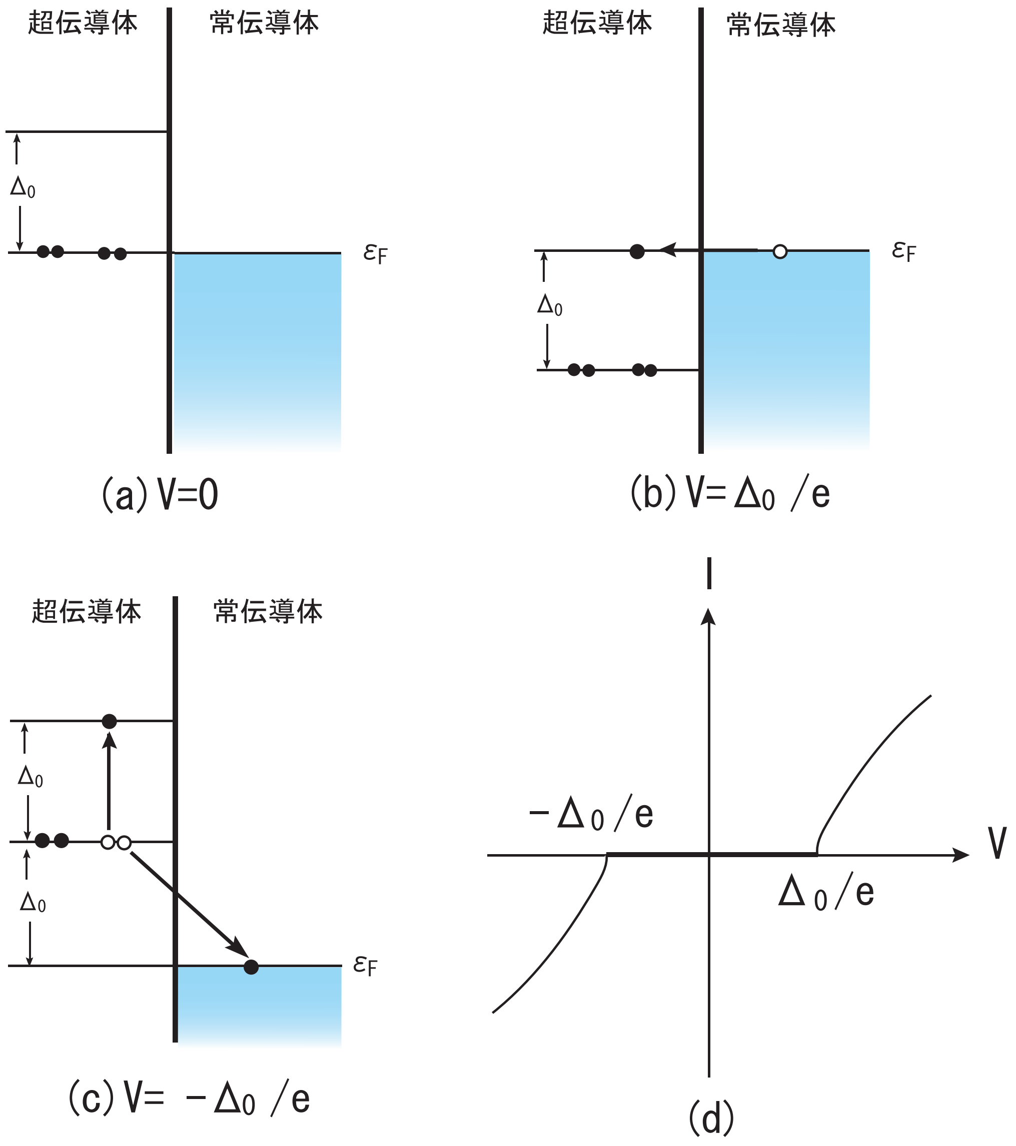


図 2.8: 超伝導体と常伝導体間トンネル電流のトンネル過程と電流-電圧特性の模式図 (T=0)

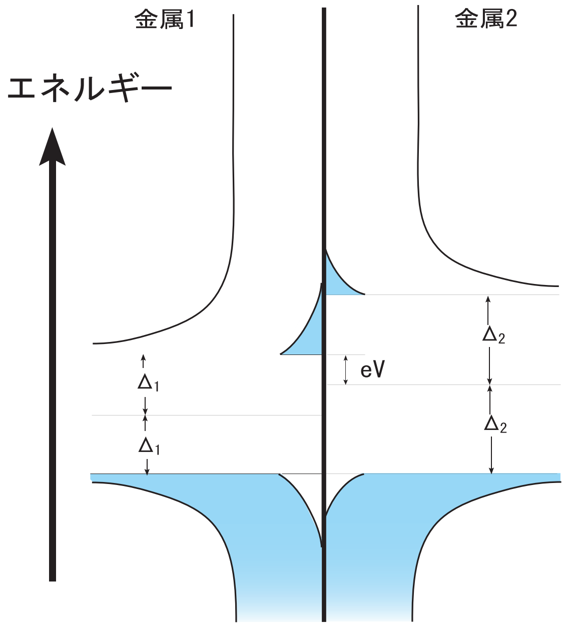


図 2.9: 準粒子トンネル現象の半導体モデル

§ 2.2　ジョセフソン効果、ジョセフソン接合

2.2.1　ジョセフソン効果

電子の波動性が巨視的スケールで出現した状態が超伝導状態であることを劇的に示したのがジョセフソン効果 (Josephson effect) である。1962 年、Josephson は超伝導トンネル効果の理論的研究を行い、次のような結論を得た [11, 12]。

1. 超伝導体 1 と超伝導体 2 のトンネル接合には電圧 0 で電子対のトンネル電流 I が流れその大きさは 2 つの超伝導体の位相差 $\delta\theta = \theta_1(t) - \theta_2(t)$ に依存する (直流ジョセフソン効果)。
2. 直流電圧 V がトンネル接合間にかかっている状態では、V に比例する周波数の交流電流 I が流れる (交流ジョセフソン効果)。

ジョセフソン方程式は次の 2 式である。

$$\begin{cases} I(t) = I_c \sin\delta\theta(t) \\ \\ \dfrac{\partial}{\partial t}\delta\theta(t) = \dfrac{2e}{\hbar}V \qquad \text{(ジョセフソンの加速方程式)} \end{cases} \tag{2.13}$$

その後、ジョセフソン効果は GL 理論の立場から自然に導かれることが示された。以下ではその立場からの説明をする。

GL 理論によるジョセフソン効果の説明

超伝導状態とは、2 個ずつの電子が phonon(格子振動) を媒介に cooper 対と呼ばれる対をつくり、これらの対が Bose-Einstein 凝縮[2]を起こした状態である。[3]つまり、すべての Cooper 対は同じ波動関数で表され、系全体を 1 つの波動関数で記述できると考えることができるだろう (G-L 理論)。このように考えたときの波動関数を特に、巨視的波動関数と呼ぶ.

[2] すべての対が 1 つの状態に落ち込む

[3] もともと、パウリの排他律などで知られるように、電子は同じ状態に 2 個以上入ることができない Fermi 粒子である。しかし、対となる事で Bose 粒子として振舞う。

巨視的波動関数に対してシュレディンガー方程式を仮定すると、時間発展は

$$\begin{cases} i\hbar\dfrac{\partial\Psi_2}{\partial t} = \mu_2\Psi_2 + K\Psi_1 \\ \\ i\hbar\dfrac{\partial\Psi_1}{\partial t} = \mu_1\Psi_1 + K\Psi_2 \end{cases} \tag{2.14}$$

で表わせる。ここで K は 2 つの超伝導体の結合の強さをあらわす。μ はそれぞれの超伝導体の持つエネルギーである。

$$\begin{cases} \Psi_1 = \sqrt{n_1}\exp(i\theta_1) \\ \\ \Psi_2 = \sqrt{n_2}\exp(i\theta_2) \end{cases} \tag{2.15}$$

を方程式 (2.14) に代入する (n_1,n_2 は超伝導体 1,2 におけるクーパー対の密度)。実数部と虚数部を比べることによって、次式が導かれる。

$$\begin{cases} \hbar\dfrac{\partial n_1}{\partial t} = 2K\sqrt{n_1 n_2}\sin\delta\theta \\ \\ \hbar\dfrac{\partial n_2}{\partial t} = -2K\sqrt{n_1 n_2}\sin\delta\theta \\ \\ -\hbar\dfrac{\partial}{\partial t}\delta\theta = \mu_2 - \mu_1 \end{cases} \tag{2.16}$$

ただし、$\delta\theta = \theta_2 - \theta_1$ とおき、最後の式を導くために $n_1 = n_2$ とした。

直流ジョセフソン効果

2 つの超伝導体間の電圧が 0 である場合を考える。式 (2.16) において $\mu_2 - \mu_1 = 0$ であるから、位相差 $\delta\theta$ は時間に依存しない一定値であり、電流は結合の強さ K 及び $\sin\delta\theta$ に比例することがわかる。

交流ジョセフソン効果

2 つの超伝導体間に直流電圧 V がかかっている場合を考える。この場合の超伝導接合間のエネルギー差は $\mu_2 - \mu_1 = -2eV$ であるから[4]

$$-\hbar\frac{\partial}{\partial t}\delta\theta = \mu_2 - \mu_1 = -2eV \tag{2.17}$$

これを解くと

$$\delta\theta(t) = \delta\theta(0) + \frac{2eVt}{\hbar} \tag{2.18}$$

ゆえに流れる電流は

$$I = I_c\sin\delta\theta = I_c\sin\left(\frac{2eVt}{\hbar} + \delta\theta(0)\right) \tag{2.19}$$

となる。つまり周波数 $2eV/h$ で振動する交流電流が流れる。このジョセフソン周波数 f_J は

$$f_J = \frac{2eV}{h} = (1\mu V \text{ 当たり } 483.60\text{MHz}) \tag{2.20}$$

2.2.2 ゲージ不変な位相差

この項では、磁場が存在するときの位相差について議論し、ゲージ不変な位相差を定義する。

[4] 係数が 2 なのは電子が対で運動しているから

磁束密度 $\vec{B} = \vec{\nabla} \times \vec{A}$ が存在する場合

磁場中の電子についての量子力学の一般的な議論により (例えば [13] など)、gauge 変換 $\vec{\boldsymbol{A}} \to \vec{\boldsymbol{A}}' = \vec{\boldsymbol{A}} + \vec{\boldsymbol{\nabla}}\chi$ に対して、巨視的波動関数は $\Psi \to \Psi' = \Psi \exp(-i2e\chi/\hbar)$ と変換される。

伴って位相も次のように変換される。ここで Φ_0は磁束量子 である。

$$\begin{cases} \theta_1' = \theta_1 - \dfrac{2\pi}{\Phi_0}\chi_1 \\ \\ \theta_2' = \theta_2 - \dfrac{2\pi}{\Phi_0}\chi_2 \end{cases} \tag{2.21}$$

そこで、次のような gauge 不変な位相差 φ を定義する。

$$\begin{aligned} \varphi &= \theta_1 - \theta_2 - \frac{2\pi}{\Phi_0}\int_1^2 \vec{\boldsymbol{A}} \cdot d\vec{\boldsymbol{s}} \\ &= \theta_1 - \theta_2 - \frac{2\pi}{\Phi_0}\int_1^2 (\vec{\boldsymbol{A}}' - \vec{\boldsymbol{\nabla}}\chi) \cdot d\vec{\boldsymbol{s}} \\ &= (\theta_1 - \frac{2\pi}{\Phi_0}\chi_1) + (\theta_2 - \frac{2\pi}{\Phi_0}\chi_2) - \frac{2\pi}{\Phi_0}\int_1^2 \vec{\boldsymbol{A}}' \cdot d\vec{\boldsymbol{s}} \\ &= \theta_1' - \theta_2' - \frac{2\pi}{\Phi_0}\int_1^2 \vec{\boldsymbol{A}}' \cdot d\vec{\boldsymbol{s}} \end{aligned} \tag{2.22}$$

2.2.3 RSJ モデル

ジョセフソン接合は、超伝導電流の他に電気容量 C を流れる変位電流や抵抗 $R(V) = G^{-1}$ を流れる電流も含んでいる。図 2.11 のような 3 つのチャンネルが並列につながれた等価回路を考える。R が電圧に依存しない一定値としたものを RSJ モデル[5]という。

有限温度で存在する熱雑音を、パワースペクトル[6]$S = 4k_BT/R$ を持つ雑音電流源 I_N として考慮し電流保存の式をたてると

$$I = I_c \sin\varphi + GV + C\frac{dV}{dt} + I_N \tag{2.23}$$

ジョセフソン結合についての基本方程式 $\dfrac{d\varphi}{dt} = \dfrac{2e}{\hbar}V$ 及び Josephson angular freqency $\omega_c = \dfrac{2eI_c}{\hbar G}$ を用いて τ、β_c:McCumber parameter を導入する。

$$\begin{cases} \tau \equiv \omega_c t = \dfrac{2e}{\hbar}\dfrac{I_c}{G}t \\ \\ \beta_c \equiv \dfrac{\omega_c C}{G} = \dfrac{2eI_cC}{\hbar G^2} \end{cases} \tag{2.24}$$

τ、β_c を使用して電流保存の式を整理すると次の方程式を得ることができる。

$$\beta_c\frac{d^2\varphi}{d\tau^2} + \frac{d\varphi}{d\tau} + \sin\varphi + i_N = i \tag{2.25}$$

ここで電流 I、I_N を臨界電流 I_c で規格化し無次元電流を $i = I/I_c$、$i_N = I_N/I_c$ で定義した。

[5]Resistively Shunted Junction Model

[6]ある量のゆらぎ $x(t)$ を周波数領域 f〜f+Δf で長時間測定すると $\langle x(t)\rangle = 0$、$\langle x^2(t)\rangle = S_x(f)\Delta f$ に漸近するとする。このとき S_x を x のパワースペクトルと言う。

力学モデルによる理解

熱電流ノイズ i_N を無視して式 (2.25) を次のように変形する

$$\begin{cases} \beta_c \dfrac{d^2\varphi}{d\tau^2} + \dfrac{d\varphi}{d\tau} = -\dfrac{2e}{\hbar}\dfrac{\partial U(\varphi)}{\partial \varphi} \\ \\ U(\varphi) = -\dfrac{\Phi_0}{2\pi}(i\varphi + \cos\varphi) \end{cases} \tag{2.26}$$

この式からわかるように、ノイズ電流を無視したとき RSJ モデルは速度に比例する摩擦をもつ粒子がポテンシャル $U(\varphi)$ 中を運動する力学モデルと同等である。それぞれ、粒子の座標は位相差 φ、粒子の質量はキャパシタンス C、摩擦係数は電気抵抗の逆数 $1/R$ に対応している。

力学モデルを用いて、ジョセフソン効果をより易しく理解することができる。今、ノイズ電流は無視できるものとする。図 2.10 を見ると、$i = I/I_c > 1$ のときポテンシャルはあらゆる点で右下がりであるから、質点は坂を転がり続ける。ジョセフソン方程式からこの状態は電圧 (が存在する) 状態である。一方、$i = I/I_c < 1$ のときポテンシャルは極小点を持ち、この点に留まる静止解が存在する。静止した粒子は座標 φ が一定でありジョセフソン方程式から電圧=0 となる。注意しなければならないのは、極小点がある場合でも、摩擦が弱かったり、質量が大きい場合には、一度坂を転がってしまうとポテンシャルの山を転がってしまいそのまま転がり続ける事も可能であることである。このことを考慮すると、静止解の他にも電圧状態に対応する解も存在することになり、電流-電圧特性はヒステリシスを持つ事になる。

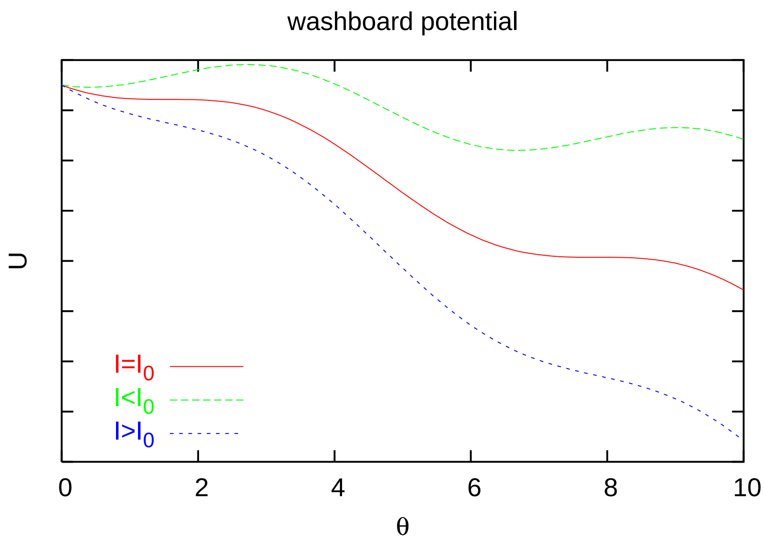


図 2.10: 力学モデルでポテンシャルに対応する、”U(φ)” しばしば洗濯板ポテンシャルと呼ばれる

直流電流源に対する応答

以下では熱電流ノイズ i_N を無視する。

$\beta_c = \omega_c CR \ll 1$ のとき

式 (2.25) は

$$\frac{d\varphi}{d\tau} + \sin\varphi = i \tag{2.27}$$

となる。

$i = I/I_c < 1$ のとき、すべての電流はジョセフソン電流と考えられるから、$i = I/I_c = \sin\varphi$。すなわち $\dfrac{d\varphi}{d\tau} \sim 0$ が得られ、ジョセフソンの加速方程式から $V \sim 0$ となる。これはまさに超伝導電流が流れている状態である。

一方、$i = I/I_c > 1$ のときは抵抗にも電流が流れる。式 (2.27) を変数分離すれば

$$d\tau' = \frac{d\varphi'}{i - \sin\varphi'} \tag{2.28}$$

両辺積分すると[7]

$$\begin{aligned} \tau - \tau_0 &= \int_{\varphi_0}^{\varphi} \frac{d\varphi'}{i - \sin\varphi'} \\ &= \left[\frac{2}{\sqrt{i^2 - 1}} \tan^{-1} \left(\frac{-1 + i \tan \frac{\varphi'}{2}}{\sqrt{i^2 - 1}} \right) \right]_{\varphi_0}^{\varphi} \end{aligned} \tag{2.29}$$

積分定数がちょうど打ち消しあうような τ_0, φ_0 をとれば

$$\varphi(t) = 2 \tan^{-1} \left\{ \sqrt{1 - i^2} \tan \left(\frac{\omega_c t \sqrt{i^2 - 1}}{2} \right) + \frac{1}{i} \right\} \tag{2.30}$$

式 (2.30) は $\varphi(t)$ すなわち $V(t)$ が周期 T

$$T = \frac{2\pi}{\omega_c \sqrt{i^2 - 1}} \tag{2.31}$$

で振動していることを意味する。電圧の直流成分 $\langle V(t) \rangle$ は一周期の時間平均で求められ

$$\begin{aligned} \langle V(t) \rangle &= \frac{1}{T} \int_0^T V(t) dt \\ &= \frac{1}{T} \frac{\Phi_0}{2\pi} \int_0^T \frac{d\varphi(t)}{dt} dt \\ &= \frac{\Phi_0}{T} \\ &= R I_c \sqrt{i^2 - 1} \qquad (i = I/I_c > 1) \end{aligned} \tag{2.32}$$

この場合にはヒステリシスは現れない。

$\beta_c = \omega_c CR \gg 1$ のとき

この場合、$\tau_{RC} \gg \tau_J$ であり φ の時間変化は瞬時に生じ、回路のダイナミクスは RC 回路によって支配される。したがって $\langle V(t) \rangle = RI$ のはずである。しかしこの議論は、すでに R のチャネルに電流が流れていることを前提にしている。$i = I/I_c \leq 1$ では、ジョセフソン接合を通って電流が流れ、φ が時間に依存しない解 (V=0) も成り立つ。したがって、ヒステリシスが現れることになる。

$\beta_c = \omega_c CR \sim 1$ のとき

この場合は数値計算を必要とする。

図 2.12 に β_c の違いによる電流-電圧特性の変化を示す。

---

[7] 次の積分公式を利用する。

$$\int \frac{dx}{a - \sin x} = \frac{2}{\sqrt{a^2 - 1}} \tan^{-1} \left[\frac{-1 + a \tan(x/2)}{\sqrt{a^2 - 1}} \right] \qquad (a^2 > 1)$$

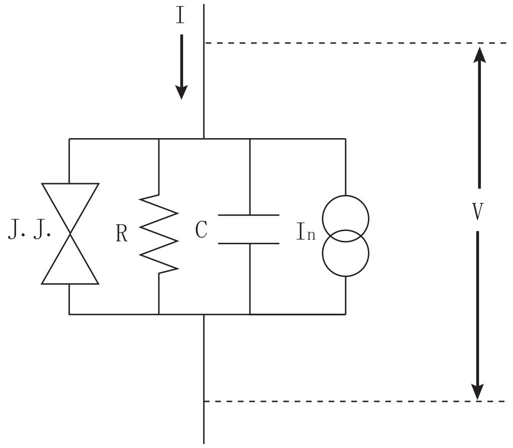


図 2.11: ジョセフソン接合の等価回路

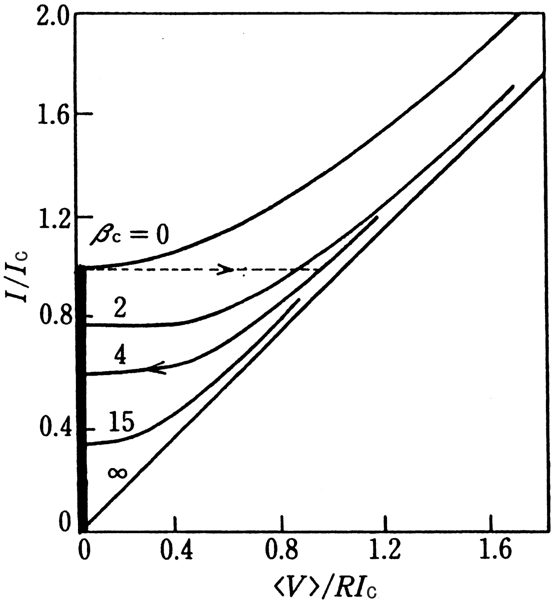


図 2.12: 規格化されたジョセフソン接合の電流-電圧特性の β_c 依存性。ノイズ電流は無視している。[1] より引用。

交流電流源に対する応答

以下の議論では $\beta_c = \omega_c CR \ll 1$ とし電気容量の効果を無視する。また、熱電流ノイズ i_N を無視する。ジョセフソン接合に直流電圧 V をかけ、さらに交流電圧 $V_s \cos\omega_s t$ をジョセフソン接合に印加したときの式 (2.16) の位相差に関する方程式は

$$\hbar\frac{\partial}{\partial t}\delta\theta = 2eV + 2eV_s\cos\omega_s t \tag{2.33}$$

積分すれば

$$\begin{aligned}\delta\theta &= \frac{2eV}{\hbar}t + \frac{2eV_s}{\hbar\omega_s}\sin\omega_s t + \delta\theta_0 \\ &= 2\pi f_J t + \frac{2\pi V_s}{\Phi_0\omega_s}\sin\omega_s t + \delta\theta_0\end{aligned} \tag{2.34}$$

が得られる。よってジョセフソン電流 $I_J(t)$ は

$$\begin{aligned}I_J(t) &= I_c\sin\delta\theta \\ &= I_c\sin\left[2\pi f_J t + \frac{2\pi V_s}{\Phi_0\omega_s}\sin\omega_s t + \delta\theta_0\right] \\ &= I_c\sum_{n=-\infty}^{\infty}(-1)^n J_n\left(\frac{2\pi V_s}{\Phi_0\omega_s}\right)\sin\left[(2\pi f_J - n\omega_s)t + \delta\theta_0\right]\end{aligned} \tag{2.35}$$

にて表すことができる[8]。ここで J_n は n 次のベッセル関数である。一方で抵抗に流れる電流 $I_R(t)$ は

$$I_R(t) = \frac{V}{R} + \frac{V_s}{R}\cos\omega_s t \tag{2.36}$$

[8] 数学公式 $\exp(iC\sin x) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(C)\exp(inx)$, $J_{-n}(C) = (-1)^n J_n(C)$ を用いれば (J_n:n 次のベッセル関数) $\sin(a + C\sin\theta) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(C)\sin(a - n\theta)$

で与えられるから、全バイアス電流の直流成分 $\langle I(t) \rangle$ は

$$\langle I(t) \rangle = \langle I_J(t) \rangle + \langle I_R(t) \rangle = \begin{cases} \dfrac{V}{R} & (2\pi f_J \neq n\omega_s) \\ \dfrac{V}{R} + I_c \sum_{n=-\infty}^{\infty} (-1)^n J_n \left(\frac{2\pi V_s}{\Phi_0 \omega_s} \right) \sin \delta\theta_0 & (2\pi f_J = n\omega_s) \end{cases} \tag{2.37}$$

$2\pi f_J = n\omega_s$ つまり $V = \dfrac{\hbar\omega_s}{2e} n$ なる関係を満たすときに直流電流がスパイク構造を持つことになる。

通常は電源回路の内部インピーダンスは接合インピーダンスより十分大きいので、電源は定電流源として動作する。したがって直流電流 - 電圧特性は階段状特性を示すことになる[9]。

次に雨粒状のスズを押し付けて作ったジョセフソン素子 (図 2.14、図 2.15 にジョセフソン素子とマイクロ波放射用アンテナの写真を示す) のシャピロステップの測定実験のデータを図 2.13 に示す。

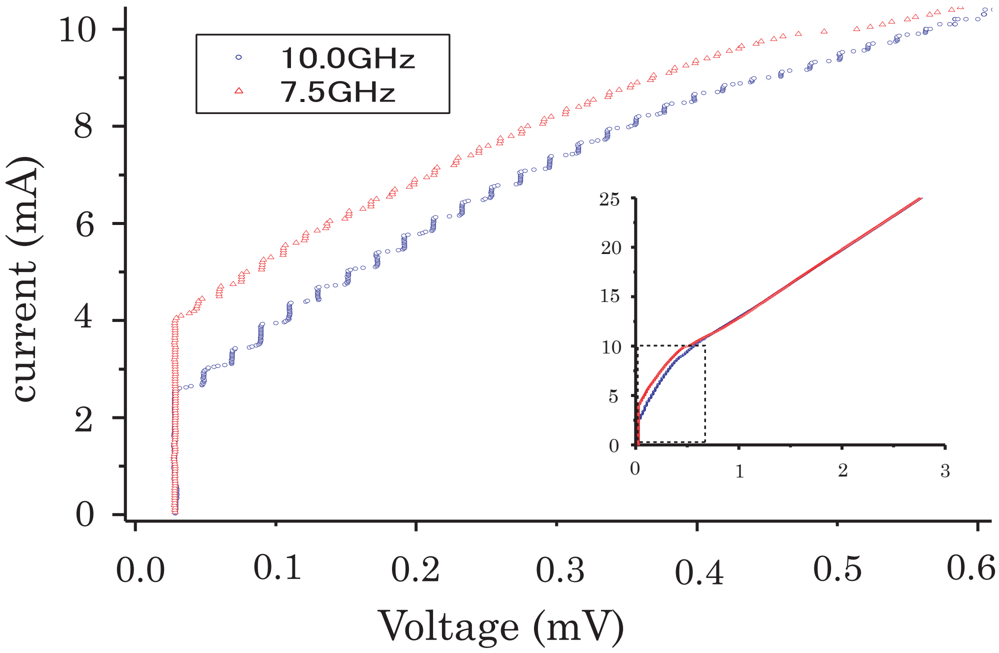


図 2.13: 雨粒状の Sn を押し付けて作ったジョセフソン接合にマイクロ波 (7.5GHz，10.0GHz) を放射したときの電流-電圧特性。温度は 2.0K

熱電流ノイズ i_N の影響

今までの議論ではノイズ電流を無視してきた。ノイズ電流は、電圧状態での電圧雑音を与えるほか、超伝導臨界電流にも影響する。ジョセフソン接合に流れる電流はバイアス電流と雑音電流の和であるから、たとえバイアス電流が I_c 以下であっても結合に流れる電流は 臨界電流 I_c を越える可能性がある。

熱雑音電流 i_N を含んだ方程式はシュミレーションによって解析されている。図 2.16 にその結果を示す。(a) は電流-電圧特性を、(b) は低周波数域での雑音電圧のスペクトル密度を示している。

[9] シャピロステップ (Shapiro step) と呼ばれ、電圧標準などに利用されている

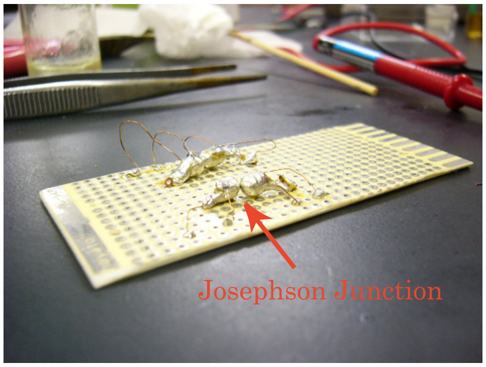


図 2.14: 雨粒状の Sn を押し付けて作ったジョセフソン接合の外観。電圧および電流を測定するための端子 4 本が引き出されている。

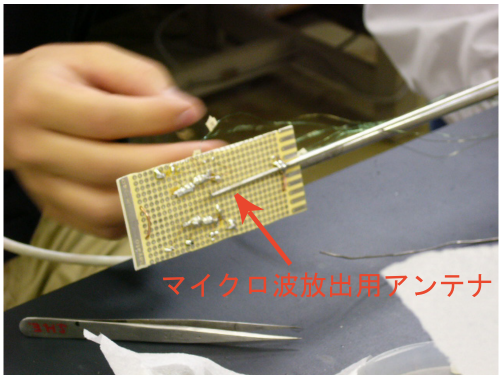


図 2.15: ジョセフソン接合に放射するマイクロ波のナンテナ

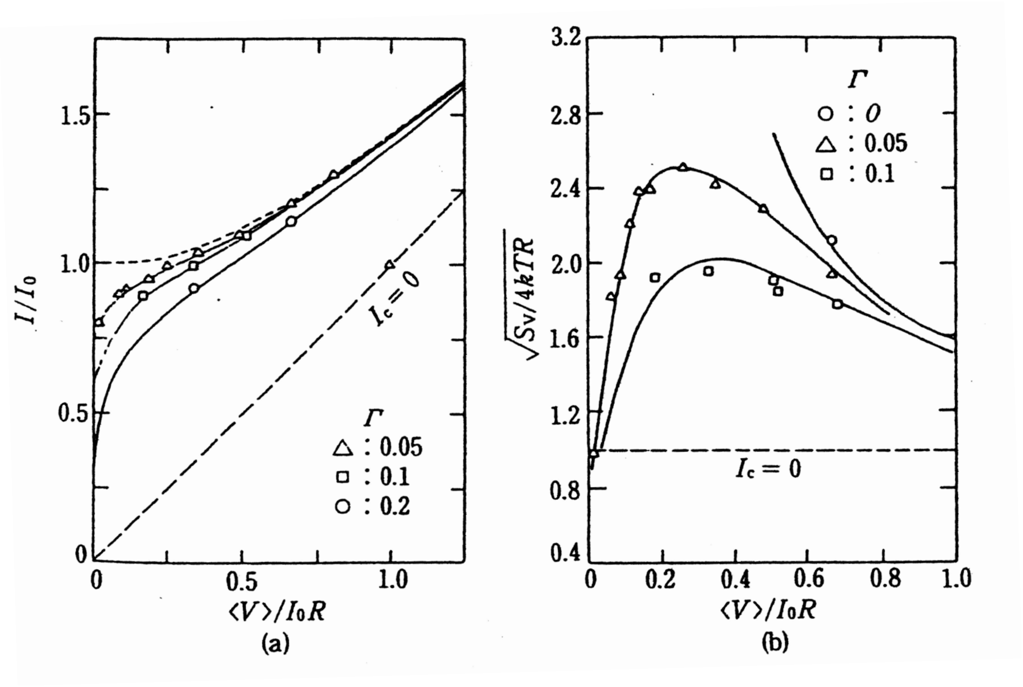


図 2.16: (a) ジョンソン雑音があるときの電流-電圧特性 (シュミレーション)、C=0 としている。破線は雑音を無視した時の特性。[2] より引用。$\Gamma = 2\pi k_B T/I_c\Phi_0$ である。(b) 低周波電圧雑音スペクトル　[2] より引用

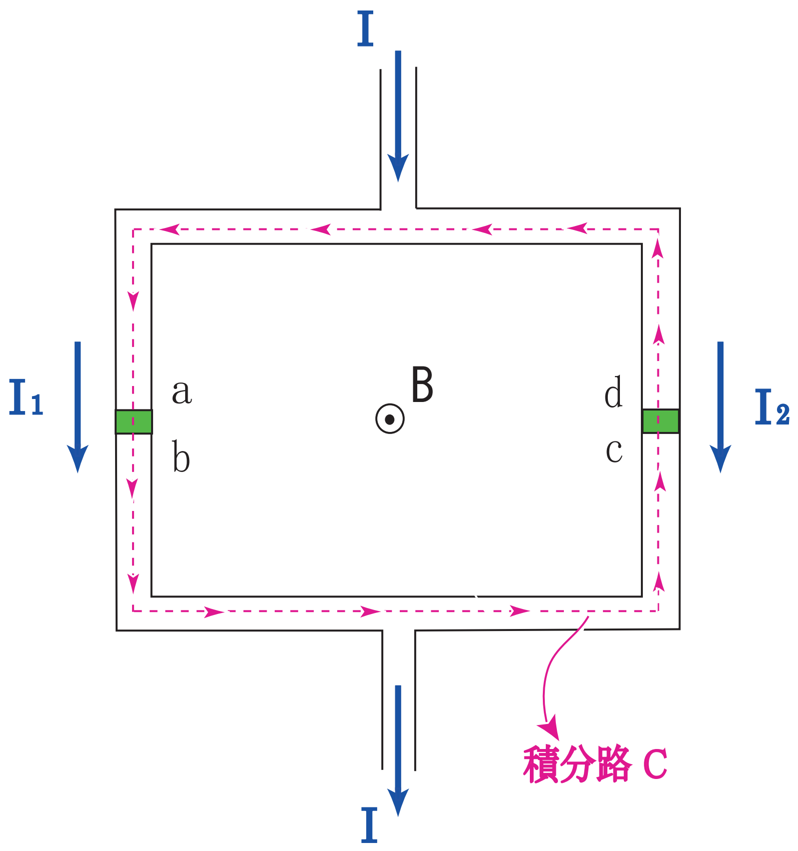


図 2.17: 2 つのジョセフソン接合で作られる SQUID の基本構造 (dc-SQUID と呼ばれる)。周回積分の積分路 C。

§ 2.3 SQUID

図 2.17 のように 2 つのジョセフソン接合を並列に並べたデバイスを超伝導量子干渉計 (Superconducting QUantum Interference Device;SQUID) という[10]。このデバイスは高感度な磁束検出デバイスとして用いられている。

2.3.1 基本式

二つのジョセフソン接合は同一であるあるとし、同じ大きさの臨界電流 $I_c(\geq 0)$ を持つとする。このときバイアス電流は次のように表せる

$$\begin{aligned} I &= I_1 + I_2 = I_c \sin\varphi_1 + I_c \sin\varphi_2 \\ &= 2I_c \cos\frac{\varphi_1 - \varphi_2}{2} \sin\frac{\varphi_1 + \varphi_2}{2} \end{aligned} \tag{2.38}$$

$\vec{\boldsymbol{\nabla}}\theta$ を C に沿って周回積分する。波動関数の一価性から n を整数とすれば次の関係を満たすべきで

$$\begin{aligned} &\oint_C \vec{\boldsymbol{\nabla}}\theta \cdot d\vec{\boldsymbol{s}} \\ &= 2n\pi \\ &= (\theta_b - \theta_a) + (\theta_c - \theta_b) + (\theta_d - \theta_c) + (\theta_a - \theta_d) \end{aligned} \tag{2.39}$$

式 (2.39) の第 1,3 項はジョセフソン接合をまたいでいるので、ゲージ不変な位相差である式 (2.22) を採用し

$$\begin{cases} \varphi_1 = \theta_a - \theta_b - \dfrac{2\pi}{\Phi_0} \int_a^b \vec{\boldsymbol{A}} \cdot d\vec{\boldsymbol{s}} \\ \\ \varphi_2 = \theta_d - \theta_c - \dfrac{2\pi}{\Phi_0} \int_c^d \vec{\boldsymbol{A}} \cdot d\vec{\boldsymbol{s}} \end{cases} \tag{2.40}$$

である。一方、式 (2.39) の第 2,4 項は超伝導体内部での位相差であるので超伝導体内部での電流密度と巨視的波動関数の関係式から

$$\begin{aligned} \vec{\boldsymbol{J}} &= \frac{-e^*\hbar}{2m^*i}(\Psi^*\vec{\nabla}\Psi - \Psi\vec{\nabla}\Psi^*) - \frac{e^{*2}}{m^*}|\Psi|^2\vec{A} \\ &= \frac{n_s(-e^*)}{m^*}(\hbar\vec{\boldsymbol{\nabla}}\theta + e^*\vec{\boldsymbol{A}}) \end{aligned} \tag{2.41}$$

となる。ここで $\Psi = \sqrt{n_s}e^{i\theta}$ とし, $e^* = 2e, m^* = 2m$ はそれぞれクーパー対の有効電荷と有効質量である。式 (2.41) を用いて $\vec{\boldsymbol{\nabla}}\theta$ を書き下すと

$$\begin{cases} \vec{\boldsymbol{\nabla}}\theta = -\dfrac{2\pi}{\Phi_0}\vec{\boldsymbol{A}} - \dfrac{2\pi}{\Phi_0}\Lambda\vec{\boldsymbol{J}} \\ \\ \Lambda \equiv \dfrac{m^*}{n_s e^{*2}} \end{cases} \tag{2.42}$$

従って、式 (2.39) の第 2,4 項は

$$\begin{cases} \theta_c - \theta_b = \int_b^c \vec{\boldsymbol{\nabla}}\theta \cdot d\vec{\boldsymbol{s}} = -\dfrac{2\pi}{\Phi_0} \int_b^c (\vec{\boldsymbol{A}} + \Lambda\vec{\boldsymbol{J}}) \cdot d\vec{\boldsymbol{s}} \\ \\ \theta_a - \theta_d = \int_a^d \vec{\boldsymbol{\nabla}}\theta \cdot d\vec{\boldsymbol{s}} = -\dfrac{2\pi}{\Phi_0} \int_d^a (\vec{\boldsymbol{A}} + \Lambda\vec{\boldsymbol{J}}) \cdot d\vec{\boldsymbol{s}} \end{cases} \tag{2.43}$$

[10] ループ中にジョセフソン接合が 1 つしかない SQUID を rf-SQUID と呼ぶ。本研究ではジョセフソン接合が 2 つある dc-SQUID のみを扱う。

と書くことができる。式 (2.40)、式 (2.43) を式 (2.39) へ代入すると

$$\varphi_2 - \varphi_1 = 2\pi n + \frac{2\pi}{\Phi_0}\oint_C \vec{\boldsymbol{A}}\cdot d\vec{\boldsymbol{s}} + \frac{2\pi}{\Phi_0}\int_b^c \Lambda\vec{\boldsymbol{J}}\cdot d\vec{\boldsymbol{s}} + \frac{2\pi}{\Phi_0}\int_d^a \Lambda\vec{\boldsymbol{J}}\cdot d\vec{\boldsymbol{s}} \tag{2.44}$$

が得られる。SQUID の超伝導線の太さが磁束侵入深さより十分深いとすると、式 (2.44) で電流密度を $\vec{\boldsymbol{J}} = \vec{\boldsymbol{0}}$ と考えてもよい。ストークスの定理を用いることで式 (2.44) は

$$\begin{aligned}\varphi_2 - \varphi_1 &= 2\pi n + \frac{2\pi}{\Phi_0}\int_S (\vec{\boldsymbol{\nabla}}\times\vec{\boldsymbol{A}})\cdot d\vec{\boldsymbol{s}} \\ &= 2\pi n + 2\pi\frac{\Phi}{\Phi_0}\end{aligned} \tag{2.45}$$

と変形することができる。ここで Φ は積分路 C 内を貫く磁束である。式 (2.45) を式 (2.38) へ代入すると

$$I = 2I_c\cos\left(\pi\frac{\Phi}{\Phi_0}\right)\sin\left(\varphi_1 + \pi\frac{\Phi}{\Phi_0}\right) \tag{2.46}$$

が得られる。さて、バイアス電流 $2\bar{I}$ と循環電流 I_{cir} を次のように定義する (図 2.18 参照)。

$$\begin{cases} I_1 = \bar{I} + I_{cir} \\ \\ I_2 = \bar{I} - I_{cir} \end{cases} \tag{2.47}$$

バイアス電流は SQUID の二つの接合に共通に流れるから、正味の磁束を作らない。SQUID 面を貫く磁束 Φ は外部から印加される磁束と自己磁束の和で表せるから[11]式 (2.45) を使うと

$$\begin{aligned}\Phi &= \Phi_{ext} + LI_{cir} \\ &= \Phi_{ext} + \frac{LI_c}{2}(\sin\varphi_1 - \sin\varphi_2) \\ &= \Phi_{ext} + LI_c\sin\frac{\varphi_1-\varphi_2}{2}\cos\frac{\varphi_1+\varphi_2}{2} \\ &= \Phi_{ext} - LI_c\sin\left(\pi\frac{\Phi}{\Phi_0}\right)\cos\left(\varphi_1 + \pi\frac{\Phi}{\Phi_0}\right)\end{aligned} \tag{2.48}$$

となる。

2.3.2 自己磁束 LI_{cir} が無視できるとき ($LI_{cir} \ll \Phi_{ext}$)

式 (2.48) において $\cos\left(\varphi_1 + \pi\frac{\Phi}{\Phi_0}\right) \sim 0(\Phi \sim \Phi_{ext})$ であるから $\sin\left(\varphi_1 + \pi\frac{\Phi}{\Phi_0}\right) \sim 1$。よって式 (2.46) よりバイアス電流の最大値 I_{max} は

$$I_{max} = 2I_c\left|\cos\left(\pi\frac{\Phi}{\Phi_0}\right)\right| \tag{2.49}$$

と表され、SQUID 面を貫く磁束によって周期的に変化する。この様子を図 2.19 に示す。

2.3.3 自己磁束 LI_{cir} が無視できないとき ($LI_{cir} \gtrsim \Phi_{ext}$)

式 2.49 では臨界電流は 0 から $2I_c$ の間で変化してるが、自己インダクタンスを考慮すると一般には 100 %の変調を得ることはできなくなる。自己インダクタンスを考慮したときの臨界電流の変調の様子を図 2.20 に示す。

ループ電流が無視できない場合は、式 (2.48) を条件としながら式 (2.46) を φ_1 に対して極大にすることでバイアス電流の最大値を求めることができる

[11]積分路 C 内を貫く磁束と同一視する

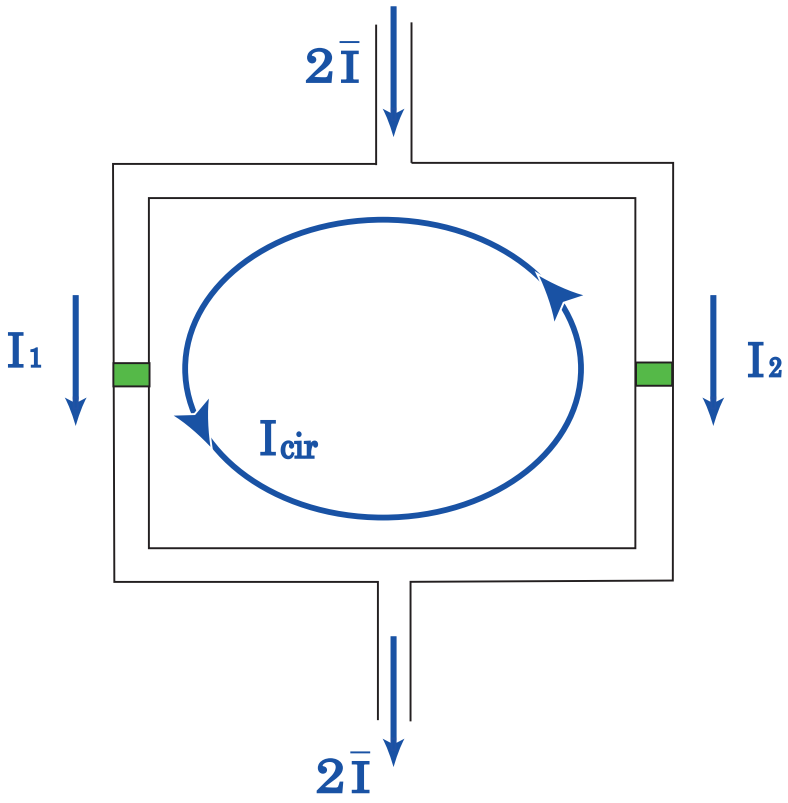


図 2.18: 平均バイアス電流 $\bar{I}$ と循環電流 I_{cir} の概念図。平均バイアス電流は正味の磁束を作らない。

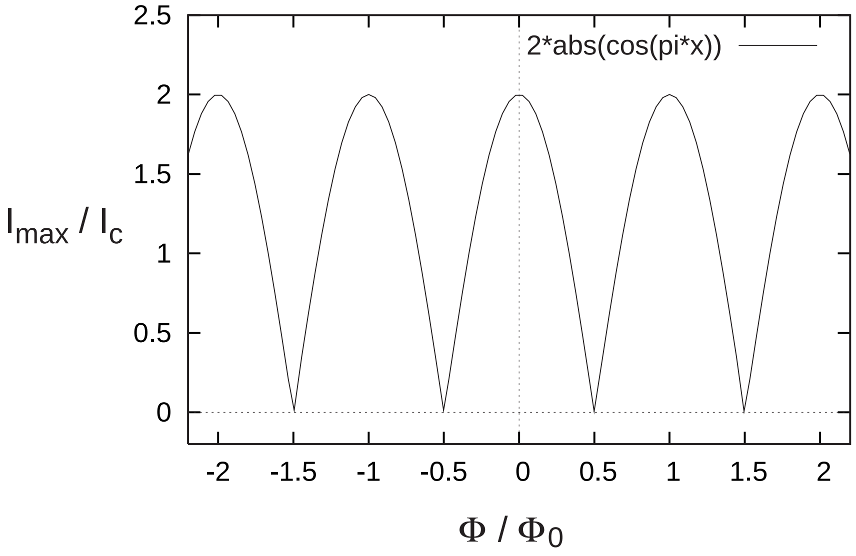


図 2.19: 外部磁束 Φ_{ext} による臨界電流 I_{max} の変調 (自己磁束が十分小さい $LI_{cir} \ll \Phi_{ext}$とき)

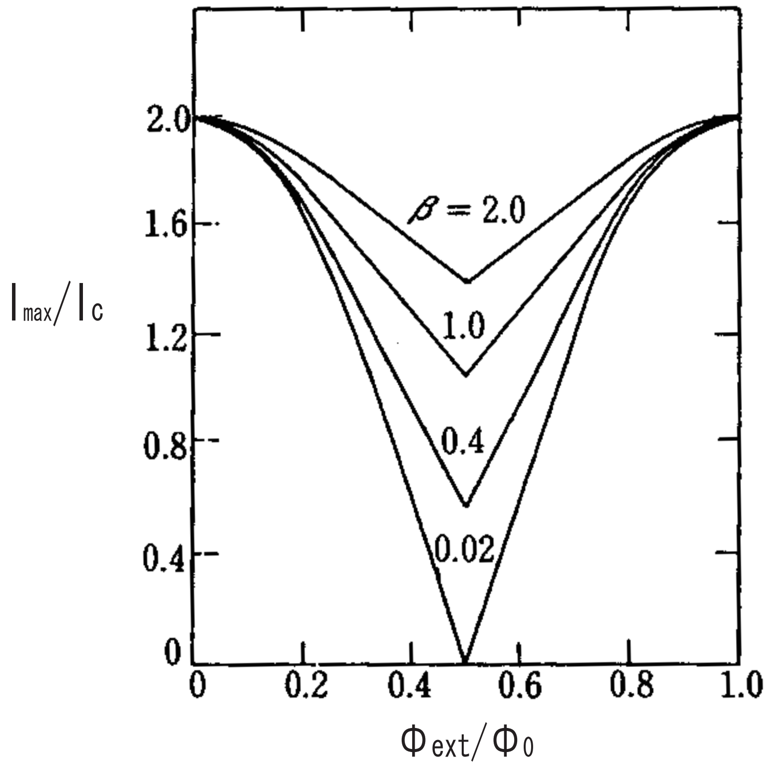


図 2.20: 外部磁束 Φ_{ext} による臨界電流 I_{max} の変調 (自己磁束が無視できない $LI_{cir} \gtrsim \Phi_{ext}$のとき)。$\beta = 2LI_c/\Phi_0$ である。[2] より引用。

第3章

実験

§ 3.1　サンプル作製プロセス

3.1.1　リソグラフィー技術

転写技術の一種であるリソグラフィー技術の向上により、トランジスタ等の半導体素子の微小化が押し進められてきた。現代社会においてこの影響はとても大きく、配線の微小化、高密度化それに伴った高機能化によって現代の科学技術が支えられているといっても過言ではない。今日ではリソグラフィーによって作製される系の典型的なサイズはミクロンサイズからサブミクロンサイズへ移行しており、研究室レベルではナノ領域での加工が可能となっている。

本研究ではスループット (生産スピード) を考慮し、比較的大きな金電極はフォトリソグラフィーによって作製し、数ミクロンオーダーの SQUID 本体は電子線リソグラフィーによって作製している。

フォトリソグラフィー

現代の IC 生産はこのフォトリソグラフィーによって行われている。フォトリソグラフィーの大きな特徴は大きなスループット (大量生産性) にある。一度マスクを作製してしまえば、そのパターンを一度に転写してしまうことが可能である。

露光方式

フォトリソグラフィーの代表的な露光方式としては

1. 密着露光方式
2. 近接露光方式
3. 等倍投影露光方式
4. 縮小投影露光方式

などがある。本実験では最も基本的な密着露光方式により露光している。この密着露光方式はレジストを添付したウェハにフォトマスクを密着させて露光させるというものである。この方式には次に述べる問題点があるため、実際の IC 生産では近接露光方式や投影露光方式が用いられている。その問題点とは基板の凹凸やホコリなどのゴミにより全面においてウェハとマスクの密着性を保つことが難しい、マスクとウェハが接触するためフォトレジストを傷つけやすくまたマスクの寿命を短くしてしまう、などである。

電子線リソグラフィー

電子ビームリソグラフィーとは、光の代わりに適度に絞った電子線を電子感光材であるレジストに照射し、化学変化を起こさせることで目的のパターンを得る技術のことである。主として次のような特徴を持つ

1. 電子線を波として考えたときのドブロイ波長は通常 0.1Å 以下であり、露光の最小寸法はビーム径によると考えられるから、分解能の理想的限界は Å オーダーとなる

2. 露光媒体が電子であるからコンピュータで磁気レンズを制御することで、電子線の位置制御が容易にできる
3. 走査型電子顕微鏡 (SEM) と同じように二次電子像を観察することができるので、それを用いて精度の高い位置合わせが可能となる。

図 3.1 に本実験で使用する電子線描画装置のシステム構成を示す。この電子線描画装置 ELS-6600 は最小線幅 0.1μm で任意の図形を描画することができる。

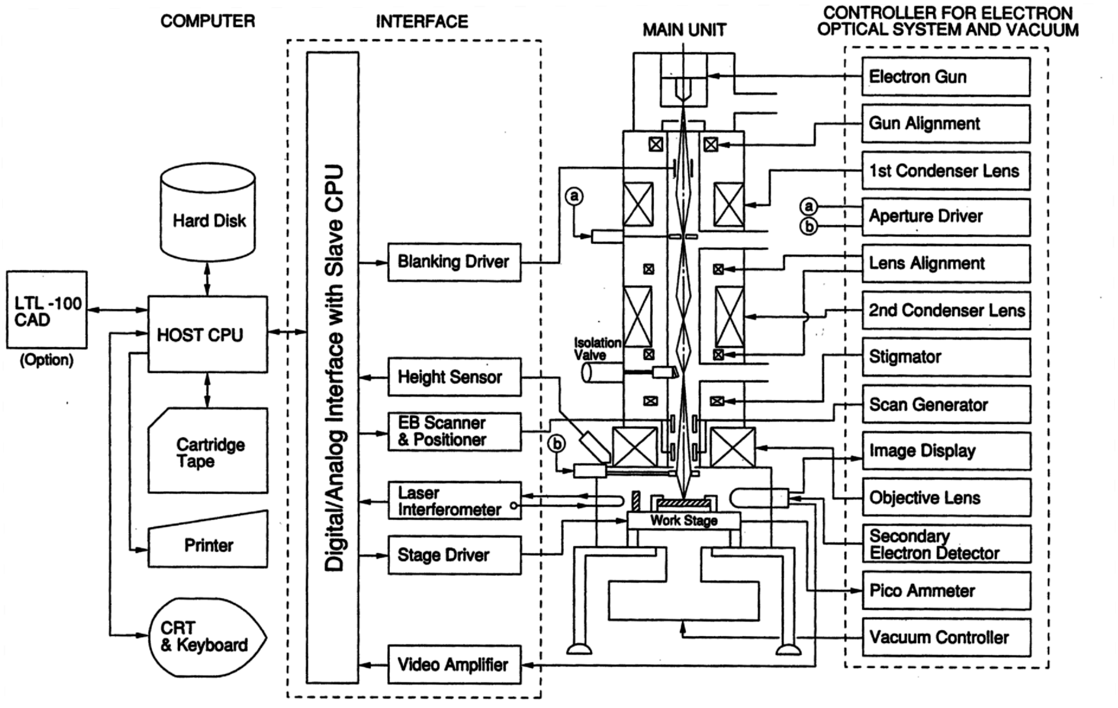


図 3.1: エリオニクス社製電子線描画装置 ELS-6600 のシステム構成。[3] より引用

3.1.2 真空蒸着法

真空蒸着とは 10^{-3}Pa 程度に排気した容器内で堆積させる材料を過熱して蒸発させ、対向する基板に積もらせて成膜させる方法である。この真空蒸着は、水晶振動子を利用することで容易かつ Å 程度の精度で蒸着膜の厚さを測定できる。これは、水晶振動子に膜がつくと、その膜厚に比例して固有振動数が変化することを利用している。

蒸着材料を加熱して蒸発させるのにもっとも簡便な方法は、タングステン (W) やモリブデン (Mo) などの高融点金属でできたるつぼに電流を流し加熱させる方法である。本研究ではこの抵抗加熱法を用いて蒸着させている。この加熱法の問題点はるつぼの材料や高融点金属が蒸着材料に混入してしまう場合があり、高純度な膜を作るには不向きである点である。

電子ビーム加熱法を用いれば、高純度の蒸着膜が得られる。これはフィラメントから発生した電子を数 kV の電圧で加速し蒸着源に照射することで加熱する方法である。るつぼを水冷しておくことで蒸着源表面のみから蒸発するので、高純度に成膜させることができる。また、電子ビーム加熱ではタングステンやモリブデンなどの高融点金属も蒸着できるという特徴もある。反面で電子ビームによる X 線が半導体に損傷を与える可能性があるが、蒸着後に 400 ℃程度の熱処理を加えることで解決できる場合がある [14]。

3.1.3 エッチング技術

エッチングは、化学溶媒中にウエハを浸して被加工層を溶かし込むウエットエッチングと反応性プラズマガスあるいはそのイオンを利用して被加工物を気化させて取り除くドライエッチングに大別される。

ウエットエッチング

ウエットエッチングは純粋に化学反応であるため、通常特性は等方的エッチングとなる。またエッチング速度は e^{-E/k_BT} に比例し、大きく温度に依存するし、エッチング液の濃度にも依存するので、うまく撹拌しなければ再現性を得ることは難しい。したがって、ウォーターバスを使って温度制御をおこなったり、スターラ等を用いて撹拌することが重要である。

ドライエッチング

集積回路の微細化が進むにつれて、ガスを使ったドライエッチングが次第に使われ始めるようになった。その主な理由は (1) ウエットエッチングに比べて微細加工精度に優れる。(2) 廃液処理よりも廃ガス処理のほうが容易。(3) 自動化がウエットエッチングよりも容易。などである。

ドライエッチングは活性ガスを発生させる方法とエッチング機構の違いにより以下のように分類される。

プラズマエッチング

プラズマエッチングとは、活性な F や Cl の化合物気体[1]あるいは O_2 気体などを 1〜100Pa(およそ 10〜1000mtorr) の圧力下で高周波の電場を印加してグロー放電を起こさせ、気体化合物を化学的に活性なイオン、電子、ラジカル (遊離原子) に分離させてその化学反応を利用するものである。プラズマエッチングも化学反応であるので、ウエットエッチングと同様にエッチング速度は温度に大きく依存する。

プラズマエッチングは加工精度から見て、あまりよいものとはいえない。というのも、プラズマエッチングで反応に寄与する粒子は基板に対してあらゆる方向から入り込むため、ウエットエッチングと同様に等方的なエッチングとなる。よってアンダーカットを生じさせてしまうのである。このような理由でプラズマエッチングの加工精度は線幅で数 μm 程度が限界のようである。

反応性イオンエッチング (RIE)

プラズマエッチングに異方性をもたせて、よりよいエッチング精度を得るために開発されたのが反応性イオンエッチング (RIE[2]) である。これは、プラズマに電位差を与えて、例えばプラズマ中の F^- をウエハに垂直方向へ引き込みエッチングをおこなうというものである。化学的エッチングと物理的エッチングを組み合わせたものと解釈することもできる。

スパッタエッチング

プラズマエッチングや RIE では化合物を使用したが、その代わりにアルゴン (Ar) やキセノン (Xe) などの希ガスを放電させて生じる高エネルギーイオンを衝突させて表面の分子を剥ぎ取る方法をスパッタエッチングという。特に、不活性ガスを数 kV で加速し方向性イオンビームにして衝突させる方法をイオンミリング (イオンビームエッチング) という。プラズマエッチングや RIE と違う点は純粋に物理的過程でエッチングをおこなっていることである。

---

[1]例えば CF_4、CCl_4 など

[2]Reactive Ion Etching

3.1.4 SQUID 作製プロセス

以下に本研究で使用した SQUID の作製手順を記す。

フォトリソグラフィーのレジストプロセス

前処理

Si ウエハーにフォトレジストを添付する前に、窒素ガスをウエハーに吹き付ける (以下では N_2 ブローと略す) ことで表面のゴミやホコリを除去する。

Si ウエハー表面は物理的に吸着した H_2O と表面のヒドロキシル基 (-OH) と化学的に吸着した H_2O による多分子層で覆われている。この状態でレジストを添付すると、レジストの接着性低下をまねきウエットエッチング時のレジストパターンやアンダーカットに悪影響をおよぼす可能性がある。

物理的に吸着した H_2O は比較的容易に除去することができる。ホットプレートの温度を 110 ℃に保ちながら Si ウエハーを数分ベークする (脱水ベーク)。その後、ウエハーは自然冷却させる。しかしながら化学的に結合した H_2O は残存しているためシアンカップリング剤である HMDS[3]を用いて表面を疎水性にする (図 3.2 参照)。実際はスピンコータをもちいて HMDS を 500rpm、5sec → 3000rpm、数 sec(表面が均一になり乾くまで) スピンコートする。

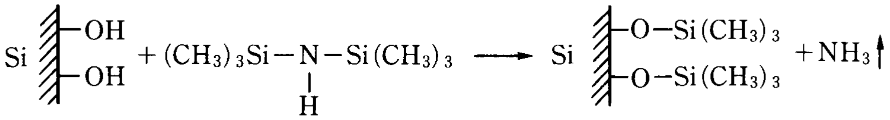


図 3.2: HMDS の化学作用

レジスト添付

フォトレジストとして SHIPLEY 社の MICROPOSIT S1808(ポジ型) を使用した。HMDS を添付した直後にフォトレジストを Si ウエハーに滴下しスピンコート (500rpm、5sec → 3000rpm、60sec) する。このときレジストが均一に広がっていることを確認する。マニュアルによるとこの回転速度でのレジストの厚さは約 0.9μm である。

プリベーク

スピンコート直後のレジストには溶媒が大量に含まれており、このままでは現像速度が速く再現性に問題がある。また接着性にも劣る。そのためホットプレートの温度を 110 ℃に保ち 6 分間ベークする。

露光

マスクアライナを用いてあらかじめ作製してあるマスクと Si ウエハーを密着させ、水銀灯の紫外線で密着露光する。

現像

現像前にクロロベンゼンに 1 分間浸す。クロロベンゼンから取り出した後、すばやく N_2 ブローによってクロロベンゼンを完全に除去する。現像液は SHIPLEY 社の MF319 を使用した。主成分は現像液として代表的な TMAH[4]である。MF319 中でウエハーを振りながら室温で 8 分間現像処理をする。そして純水で 1 分間のリンスを 2 回繰り返し、最後に N_2 ブローで水を除去する。

[3]HexaMethylDiSilazane；ヘキサメチルディシラザン
[4]TetraMethylAmmoniumHydroxide；テトラメチルアンモニウムハイドロオキサイド

金の真空蒸着とリフトオフ

真空蒸着

フォトリソグラフィーによって転写した金電極パターンを作製するために、金を真空蒸着する。その前にクロムを 10^{-5}〜10^{-6}torr(10^{-3}〜10^{-4}Pa) 程度の真空度で 50Å 蒸着する。これはクロムをウエハと金の間に蒸着することで付着強度が増加するためである [15]。クロム蒸着後、金を 10^{-5}〜10^{-6}torr(10^{-3}〜10^{-4}Pa) 程度の真空度で 1000Å 蒸着する。

リフトオフ

余分な金とレジストを取り除き、金電極パターンとするために次のリフトオフプロセスを行う。室温で 1165remover に 80min 浸してレジストを剥離させる。続いて IPA[5]で 1 分リンスの後、純水で 1 分間のリンスを 2 回繰り返し、最後に N_2 ブローで水を除去する。これで SQUID 以外の大きな金電極が完成したことになる。

酸素プラズマエッチング

金電極の表面に絶縁物であるレジストなどが残留していると電極として意味を成さなくなってしまうので、酸素プラズマエッチング (アッシング；灰化) をおこなう。

電子線リソグラフィーのレジストプロセス

前処理

レジストを添付する前に、N_2 ブローで表面のゴミやホコリを除去する。

電子線露光用下層レジスト添付

電子線露光用下層レジストとして PMGI-SF7(ポジ型) を使用した。レジストをウエハーに滴下しスピンコート (500rpm、5sec → 3000rpm、120sec) する。このときレジストが均一に広がっていることを確認する。この回転速度でのレジストの厚さは約 530nm である。

プリベーク

スピンコート直後のレジストには溶媒が大量に含まれており、このままでは現像速度が速く再現性に問題がある。また接着性にも劣る。そのためホットプレートの温度を 230 ℃に保ち 15 分間ベークする。ベーク後は自然冷却させる。

電子線露光用上層レジスト添付

電子線露光用下層レジストとして OEBR1000(ポジ型) を使用した。レジストをウエハーに滴下しスピンコート (500rpm、5sec → 3000rpm、120sec) する。このときレジストが均一に広がっていることを確認する。上層レジストの膜厚は下層レジストのそれに比べて十分薄い。

プリベーク

ホットプレートの温度を 180 ℃に保ち 60 分間ベークする。

電子線露光

SQUID のパターンを電子線露光装置を用いて露光する (図 3.4 の (a) 参照)。描画するパターンの中心部を図 3.3 に示す。与えるドーズ量は約 64μC/cm^2 である[6]。

---

[5] IsoPropyl Alcohol；イソプロピルアルコール

[6] この描画装置の画素面積は 625nm^2 で、我々の条件はドーズ時間が約 8μs、放射電流値が 50pA であった。

上層レジストの現像

上層レジスト現像液として OEBR 現像液を使用した。OBER 現像液中でウエハーを軽く振りながら 20 秒間現像処理をする (図 3.4 の (b) 参照)。続けて IPA で 30 秒リンスした後、純水で 30 秒リンスする。純水から取り出して乾かすことなく下層の現像に移る。

下層レジストの現像

下層レジスト現像液として MF312 を使用した。上層レジストの現像に引き続き、下層レジストの現像をおこなう。MF312 中でウエハーを軽く振りながら 20 秒間現像処理をする。下層レジストは上層レジストよりも感度が高いので下層レジストにはアンダーカットが生じる (図 3.4 の (c) 参照)。続けて純水で 30 秒リンスした後、IPA で 30 秒リンス、最後に純水で 30 秒リンスして水を切るようにゆっくり取り出す。レジストパターンを傷つける恐れがあるので N_2 ブローはおこなわない。

アルミニウムの斜め蒸着

SQUID のトンネル接合を作製するために斜め蒸着という手法を使用する。異なる方向からそれぞれ蒸着することで蒸着位置をずらすことができる (図 3.4 の (d)〜(f) 参照)。初回の蒸着後に酸素を蒸着器中に導入することで酸化膜を生じさせ、これを絶縁膜としてトンネル接合を作製する。斜め蒸着を使ってトンネル接合を作製する模式図を図 3.5、図 3.4 に示す。

条件は以下のようである。まず、アルミニウムを 10^{-5}〜10^{-6}torr(10^{-3}〜10^{-4}Pa) 程度の真空度で 250 Å蒸着する。その後、酸化させてから別角度で 300 Å蒸着させる。

リフトオフ

余分なアルミニウムとレジストを取り除くために次のリフトオフプロセスを行う。ウォーターバス中で 1165remover を 60 ℃に保ち 60 分間浸してレジストを剥離させる (図 3.4 の (g) 参照)。続いて IPA で 1 分リンスの後、純水で 1 分間のリンスして最後に N_2 ブローで水を除去する。

3.1.5 作製された SQUID の概要

SQUID の外観、線幅、トンネル接合の面積

前節のプロセスによって作製された SQUID を走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察した。その画像を図 3.6 に示す。SEM 画像を見ると SQUID ループの線幅が約 150nm であり、トンネル接合の接合面積が約 $0.01\mu\mathrm{m}^2$ である。SQUID 面積は設計通り約 $4\mu\mathrm{m}^2$ である。この面積のとき、SQUID に垂直磁場を印加した場合の変調周期は 5gauss 程度になるはずである。

トンネル抵抗

本実験における測定では複数個のサンプルを用いているが、どのサンプルも 2 端子測定による室温での抵抗値は 30〜40kΩ であった。したがって、1 トンネル接合あたりでは 60〜80kΩ の抵抗値であると考えることができる。

Ambegoakar-Baratoff の式による臨界電流の見積もり

Ambegoakar と Baratoff はトンネル接合系に微視的な理論を適用して臨界電流 I_c の温度依存性を導いた [16, 17]。

$$I_c = \frac{\pi\Delta(T)}{2eR}\tanh\frac{\Delta(T)}{2k_BT} \tag{3.1}$$

式 (3.1) で Δ は同種の金属間のトンネルを考えたときの超伝導エネルギーギャップ、R はトンネル抵抗の大きさである。この式に後の実験結果と似たような値を代入して臨界電流を計算してみる。パラメータの値はそれぞれ $\Delta = 0.3$meV、$R = 30$kΩ、$T = 600$mK として I_c を計算すると、

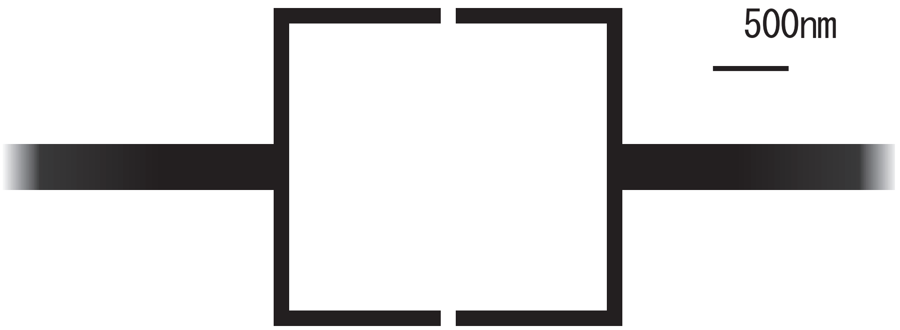


図 3.3: SQUID の描画パターン

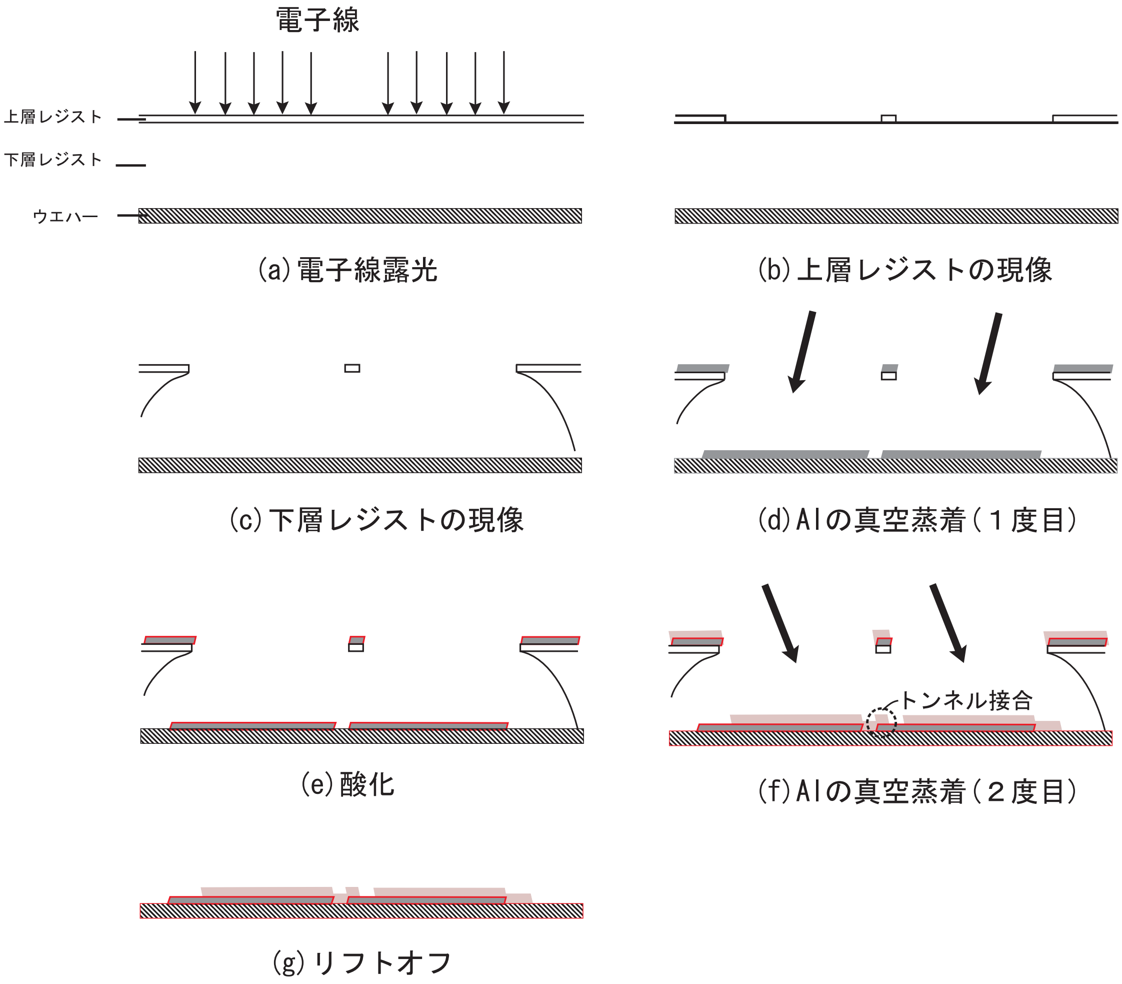


図 3.4: 電子線リソグラフィーのレジストプロセス

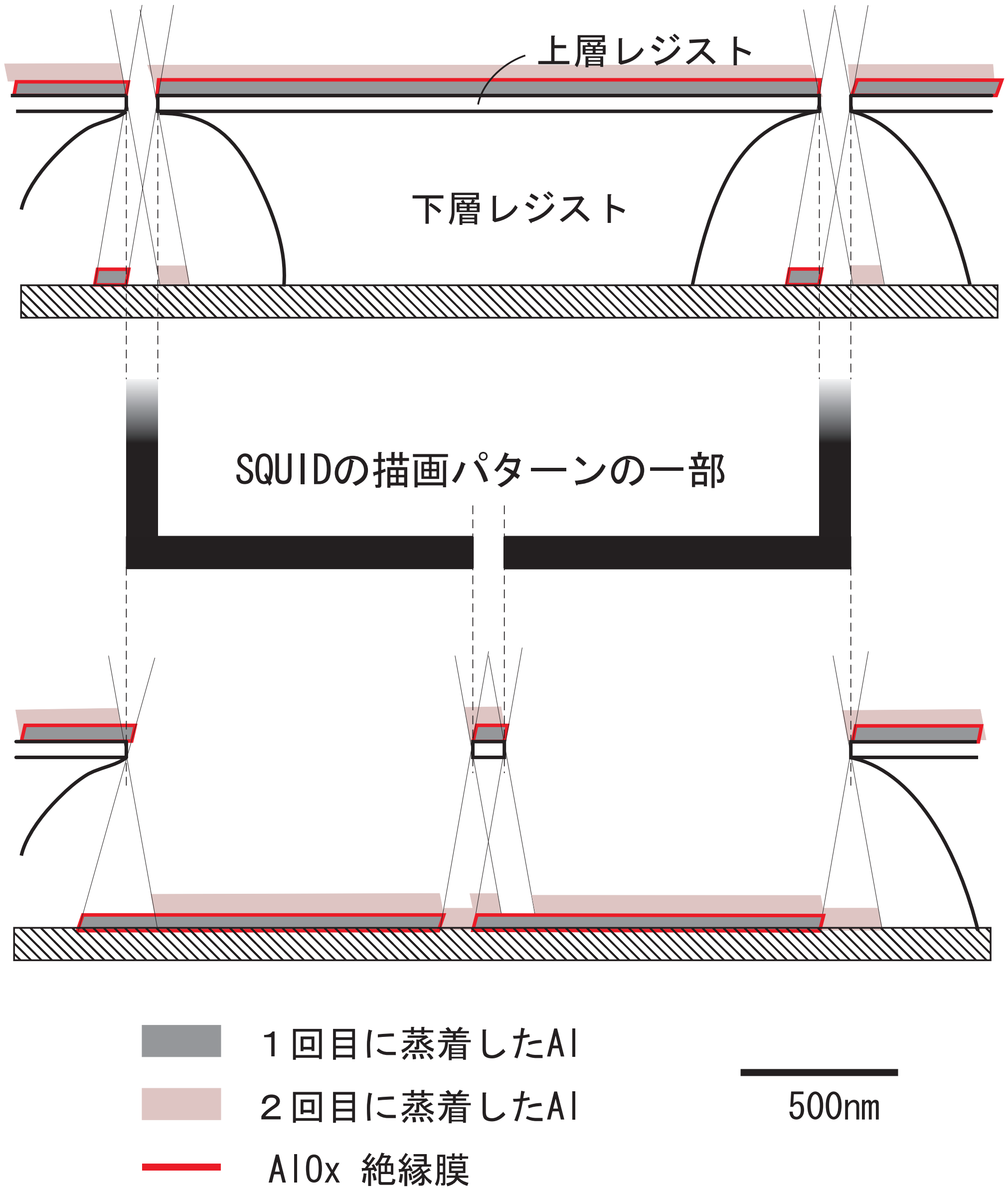


図 3.5: 斜め蒸着の模式図

$_c \sim$ 16nA となる。この値は実験結果と比較して 2 桁も大きい。これは実際の実験ではバイアス電流に電流ノイズが含まれ、バイアス電流の揺らぎがあるためである。

トンネル接合の電気容量の見積もり

トンネル接合の面積によって接合の電気容量を見積もることができる。Al-AlO_x-Al 型のトンネル接合の場合は 1μm^2 当たり 45fF という経験則がある [18]。この値から電気容量を見積もると 1 接合当たり約 0.5fF の電気容量を持つことになる。

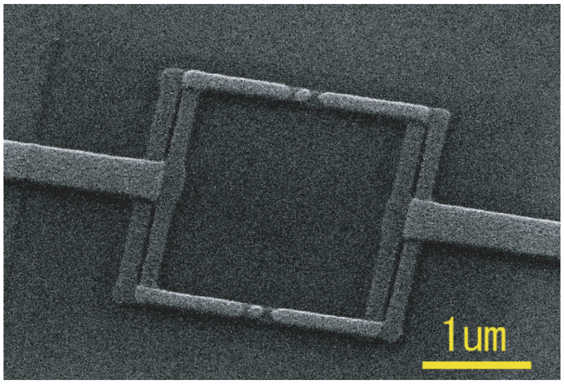


図 3.6: SQUID の SEM 画像

3.1.6 微小鉛薄膜の作製

SQUID による微小超伝導体の磁束状態の観測を目指して鉛の微細加工を試みた。実際には SQUID を用いた観測には至らなかったが、以下にその概要を記す。超伝導体へのボルテックスの侵入を観測しようとしたとき、ボルテックスが超伝導体中の形状による乱れや不純物による散乱を受けるのは好ましくない。今回は基板としてマイカを用いて均一な表面を持つ超伝導体薄膜の作製をめざした。

微小鉛薄膜の作製プロセス

鉛の真空蒸着

カッターで薄く剥離させたマイカに鉛を 400Å 真空蒸着させる。真空度は 10^{-5}〜10^{-6}torr(10^{-3}〜10^{-4}Pa) 程度であり、マイカを液体窒素で冷却している金属に固定し冷却しながら蒸着した。これは室温、あるいは 160 ℃で蒸着したときにには表面がアモルファス化するのに比べ、冷却しながら蒸着すると表面が均一になるためである。

レジスト添付

使用したレジストは NANO$^{\rm TM}$ XP SU-8(ネガ型) である。ただし原液のままでは粘性が大きすぎるので、SU 現像液で薄めた。体積比でレジスト:現像液=2:3 である。このレジストをスピンコーターでスピンコート (500rpm、5sec → 3000rpm、60sec) する。

ソフトベーク

ホットプレートの温度を 110 ℃に保ち 45 分間ベークする。ベーク後は自然冷却させる。

電子線露光

作製する薄膜の形状を電子線描画装置を用いて電子線露光する。与えるドーズ量は約 1μC/cm^2 である。

ベーク

ホットプレートの温度を 100 ℃に保ち 15 分間ベークする。

現像

SU 現像液を用いて現像処理をおこなう。室温 (22-24 ℃) で 20 分間現像液に浸しておく。攪拌等は行わない。現像液から取り出した直後に IPA で 1 分間、続けて純水で 1 分間リンスする。最後は N_2 ブローで水を取り除く。

ハードベーク

ホットプレートの温度を 150 ℃に保ち 3 分間ベークする。

反応性イオンエッチング

残ったレジストをマスクとして CF_4 ガス中での RIE をおこない、余分な鉛をエッチングする。

作製した微小鉛薄膜の概要

作製した微小鉛薄膜の SEM 画像を図 refPbdisk1、図 3.8 に示す。この方式ではネガレジストをマスクとしているため RIE を施すときにどうしてもエッジ部分からレジストが削れてしうので加工精度の限界は約 2〜3μm となる。

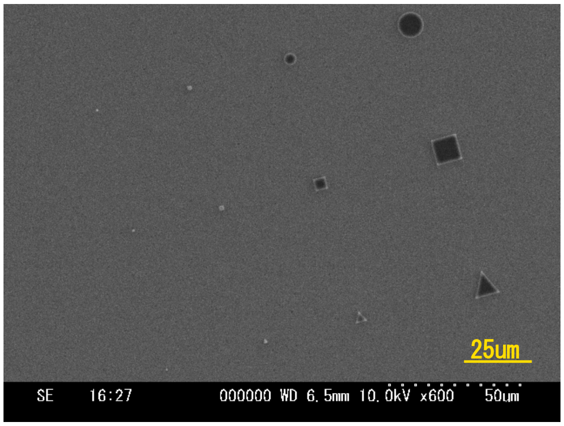


図 3.7: さまざまな形 (●、▲、■) と大きさ (10μm 〜1μm) の Pb 薄膜

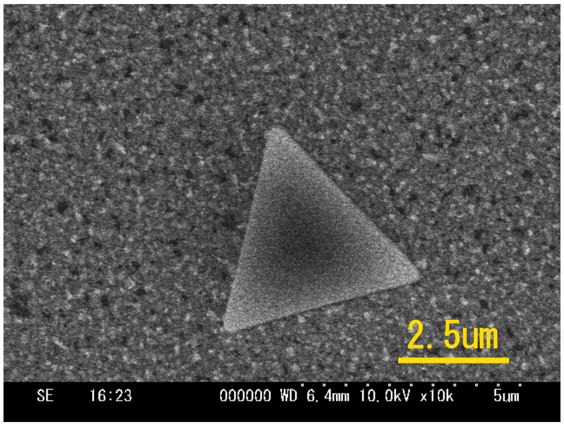


図 3.8: 微細加工した Pb 薄膜の拡大画像

§ 3.2 測定系

3.2.1 ^{3}He − ^{4}He 希釈冷凍機

^{3}He − ^{4}He 希釈冷凍機は mK 領域での液体 ^{3}He と液体 ^{4}He の比熱の違いを利用した冷凍機である。また、^{3}He − ^{4}He 希釈冷凍機は 1〜0.01K 程度の温度を長時間維持できる優秀な冷凍機である。本研究では大塚洋一教授考案、作製の簡易型希釈冷凍機を用いた。この簡易型希釈冷凍機は予冷、^{3}He − ^{4}He 循環、測定を 1 日でおこなえ、100mK 以下の温度を達成できる。

3.2.2 測定回路

実験結果について述べる前に、本研究で使用する測定回路について簡単に述べる。電流-電圧特性を測定するとき、定電圧をバイアスする場合と定電流をバイアスする場合がある。定電圧をバイ

アスするときは図 3.9 のような回路を使い、定電流をバイアスするときは図 3.10 のような回路を使う。

SQUID には常に一定の電圧をバイアスしておきながら、超伝導マグネットにより印加する磁場を掃印して SQUID を流れる電流あるいは抵抗の大きさを調べる時には図 3.11 のような回路を用いる。ノイズを取り除くためにロックイン増幅器を使用している。交流電源として振幅 100mV を用いた場合、SQUID には約 10μV の交流電圧が印加されていることになる。

なお、測定回路、サンプル、希釈冷凍機全体は電磁シールドルーム中に置かれており外部の電磁波の影響を受けないように工夫されている。

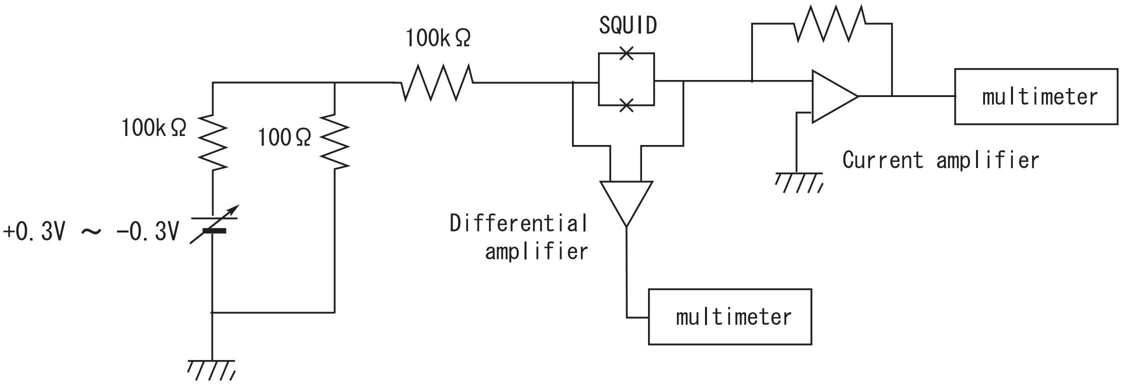


図 3.9: 定電圧バイアス回路。電流-電圧特性の測定に使用。

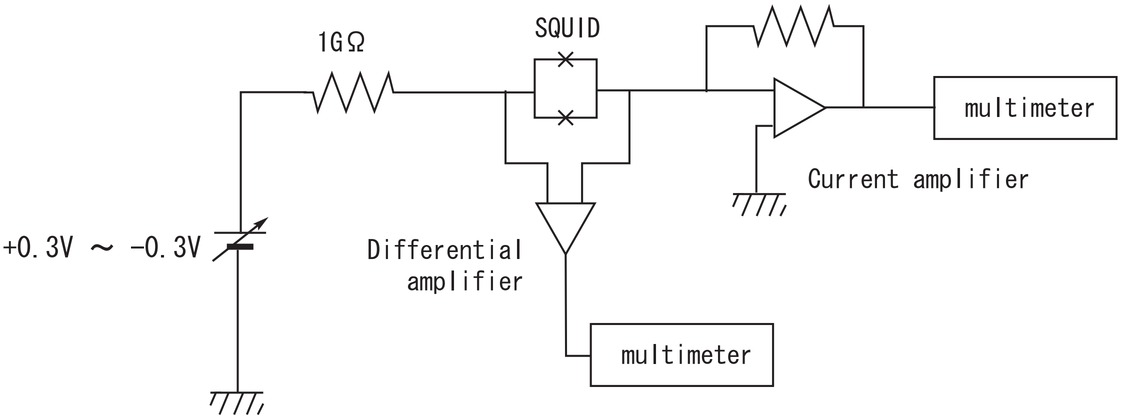


図 3.10: 定電流バイアス回路。電流-電圧特性の測定に使用。

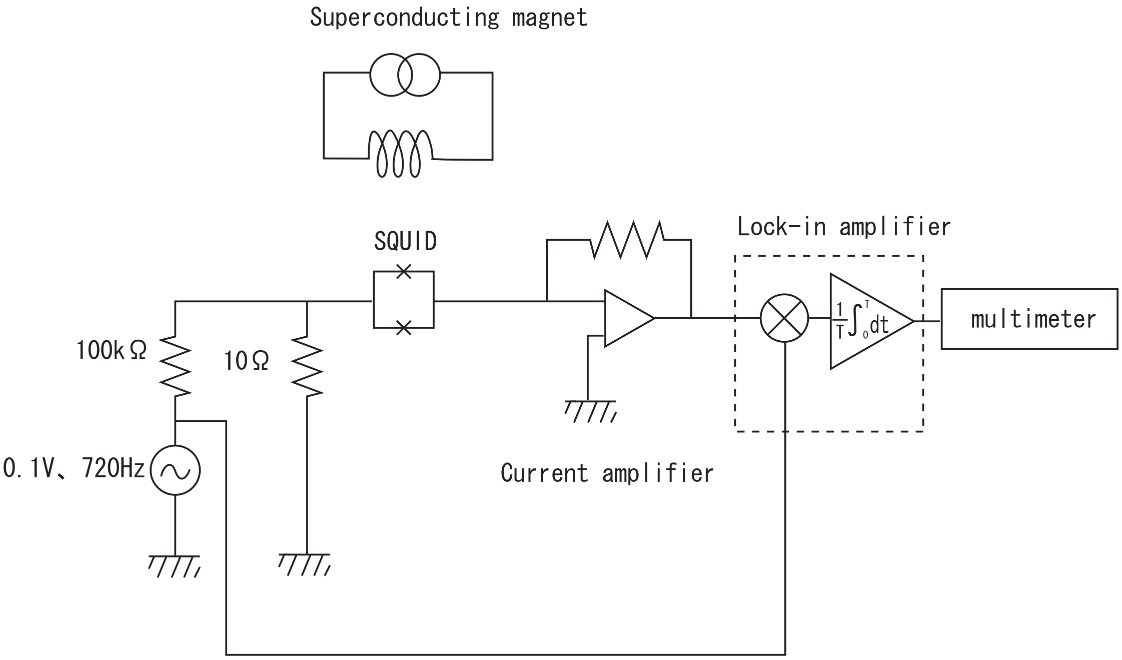


図 3.11: 定電圧バイアス回路。コンダクタンス振動の測定で使用する。

第 4 章
結果、考察

§ 4.1 測定結果

4.1.1 電流-電圧特性

定電圧バイアス下での電流-電圧特性

作製した SQUID の電流-電圧特性を希釈冷凍機中で測定した。定電圧をバイアスして (回路図は図 3.9) 測定したものが図 4.1 であり、測定温度は約 680mK である。測定結果によると、ゼロバイアス付近の、通常超伝導状態にあたる部分も電圧状態にあり、有限の抵抗値が観測された。また、0.3mV、0.6mV 付近で電流値が増加しているが (後に説明する図 4.2、図 4.3、図 4.4 も参照)、これはアルミニウムの超伝導ギャップ Δ の[1] $2\Delta/e$、$4\Delta/e$ に対応した電圧と考えることができる。片方のアルミニウムが常伝導状態になったとすれば Δ/e のところで電流が増えると考えることもできるが、このような状況ができるとは考えずらい。むしろ、トンネル接合が 1 つであったという仮定を見直し、直列に 2 つのトンネル接合が並んでいると考えれば説明できる。斜め蒸着で作ったトンネル接合でつながっていると思っていた部分が段切れを起こしていたとすれば、直列に 2 つトンネル接合ができることになる。また、仮に段切れしていなくとも電子は下のアルミニウム (図 3.5 の一度目に蒸着したアルミニウムのこと) を通って伝導すると考えられるので、2 回トンネルする過程も起こりうる。$2\Delta/e$、$4\Delta/e$ の部分に電流が増えるのは第 1 章の超伝導体間のトンネル効果のところで考察したのと同じようにエネルギーバンド図を考えることで理解することができる。ゼロバイアス付近で電圧状態にあるのは、SQUID のトンネル接合面積が小さいために電気容量が小さく、またトンネル抵抗が大きいためにジョセフソン結合エネルギーが小さいので RSJ モデルの仮想粒子が洗濯板ポテンシャルを乗り越えることができるようになるためと解釈することができる。なぜならば仮想粒子の質量が電気容量 C に、摩擦係数がコンダクタンス R^{-1} に対応するからである。加えて、測定温度が比較的大きいので熱雑音電流も大きくなっていることも原因である。熱電流ノイズは力学モデルでの洗濯板ポテンシャルを揺らし、電圧状態へ移らせやすくする。

SQUID の消費電力

磁化測定に SQUID を使用するとき、通常ならばバイアス電流を徐々に増加させて電圧状態に遷移したところの電流を測定する。スイッチ直後に電圧状態に移るとジュール熱を発生してしまい測定温度の揺らぎにつながる。したがって、スイッチ直後の消費電力を小さくすることは重要である。このトンネル接合型のマイクロ SQUID を使用したときの消費電力はおおよそ 5×10^{-14}W である。ブリッジ型マイクロ SQUID の代表的な消費電力は 10^{-6}W であり [6] トンネル接合型は消費電力を 8 桁低くすることができる。

定電流バイアス下での電流-電圧-磁場特性

磁場を SQUID 面に対して垂直に印加させ、定電流をバイアスしながら (回路図は図 3.10) 電流-電圧特性を測定したものが図 4.2、図 4.3、図 4.4 に示されている。図 4.2 では電流値がカラーマップにより示されている。黒点がデータ点であり、赤色実線が隣接 3 項間平均の推移を表す。図 4.3、図 4.4 は特定の磁場ににおける電流-電圧特性電圧である。図 4.2 のゼロ付近に注目すると、コンダクタンスが周期的に変化していることが読み取れる。

[1] 純粋なバルクのアルミニウムは $T_c = 1.18$K であるから、BCS により超伝導ギャップは $\Delta(T=0) = 0.17$meV である。付録 B で説明しているようにアルミニウムは薄膜化により T_c が上昇する。また、蒸着時に酸素などの不純物が混入することによってさらに T_c が上昇することが知られている。

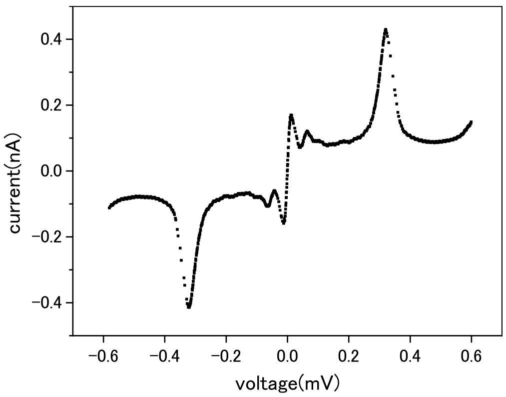


図 4.1: SQUID の電流-電圧特性 (定電圧バイアス)

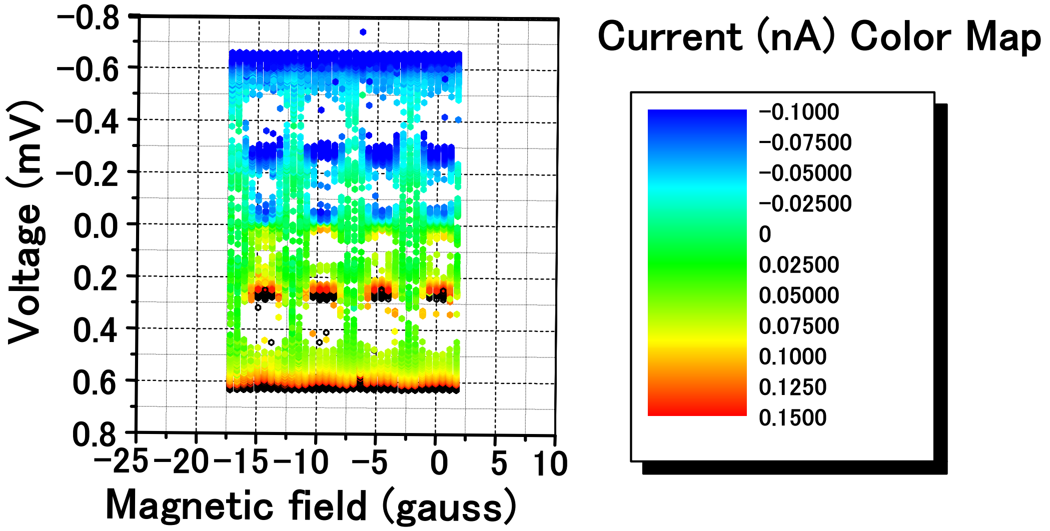


図 4.2: SQUID の電流-電圧特性 (定電流バイアス) の磁場依存性 (カラーマップ)

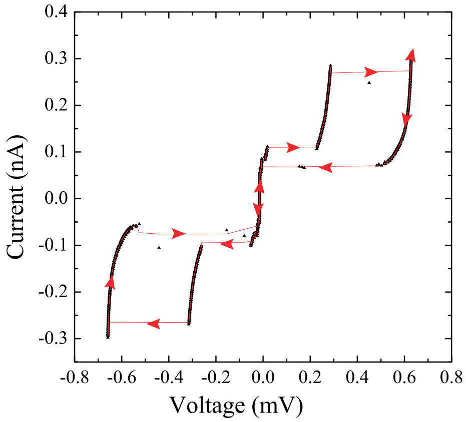


図 4.3: SQUID の電流-電圧特性 (定電流バイアス、-9.7gauss 印加)

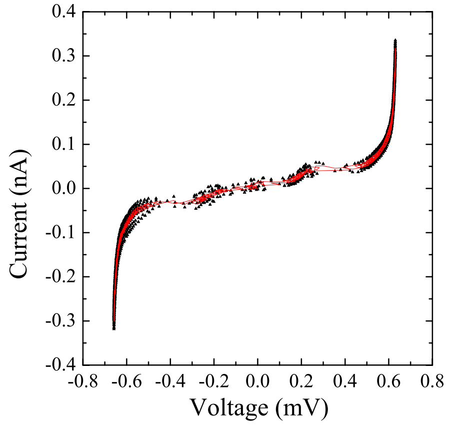


図 4.4: SQUID の電流-電圧特性 (定電流バイアス、-11.5gauss 印加)

4.1.2 コンダクタンスの磁場による振動

磁場を SQUID 面に対して垂直に印加した場合

SQUID に定電圧をバイアスしコンダクタンスが周期的に変化するポイントに電圧を固定させる。この状態で SQUID 面に垂直に印加した磁場を掃引することでコンダクタンスが振動する様子を観測した。測定回路は図 3.11 であり、測定結果の全領域を図 4.5 に示す。また、図 4.5 を部分的に拡大したものが図 4.6、図 4.7、図 4.8、図 4.9 に示されている。測定温度の推移も図 4.5 に示されている。通常の SQUID の臨界電流が振動する周期と同じようにコンダクタンスは約 5gauss 周期で振動している (図 4.10 の測定全領域のフーリエスペクトル参照)。また、図 4.5 からわかるように、3000gauss 付近まで振動の振幅はほぼ一定であるが、それ以降は徐々に振幅が少なくなり 5000gauss 付近で振動が見られなくなった。

磁場を SQUID 面に対して平行に印加した場合

同様に、定電圧をバイアスし SQUID 面に磁場を平行に印加してコンダクタンスの振動を測定した。測定結果の全領域の測定結果と共に、測定温度の推移を図 4.11、図 4.17 に示している。図 4.11 の測定は磁場掃印を低磁場側から高磁場側方向へ行ったものであり、図 4.17 は逆方向である。また、部分拡大をそれぞれのページに示している。

この実験でのコンダクタンスの振動周期をフーリエスペクトル図 4.16、図 4.22 をガウス分布でフィッテングして見積もってみる。低磁場側から高磁場側へ掃印した図 4.16 は約 95gauss、高磁場側から低磁場側へ掃印した図 4.22 は約 99gauss のところでピークが現れる。このように振動周期に多少のずれが生じたが、これは測定条件の違いに起因するところが大きい。例えば測定温度の違いや磁場掃印の速度の違いである。実際、高磁場側から低磁場側への掃印速度は逆の速度の平均 3 倍速かった。振動周期からこの実験での磁場と SQUID の平行度は約 3 °と見積もられた。磁場と SQUID 面が平行であるような理想的な状況では振動周期が無限大になる。

コンダクタンスの振動の振幅は共通して、約 2000gauss 付近で最も大きくそれより高磁場側ではそれより小さくなる。ただし、4000gauss 付近でいったん振幅が弱まった後に再び振幅が強まる構造がある。図 4.11 では測定温度の変化を反映しているとも考えられるが、SQUID の持つ固有の特性かどうかははっきりしない。振幅は約 8000gauss 付近まで続き、10000gauss では完全に振動がなくなる。これは厚さが 200〜300Å のアルミニウム薄膜の臨界磁場とほぼ一致する [5](p.49 からの付録 B 参照)。よって、コンダクタンスの振動が失われるのは、アルミニウムの超伝導的性質が失われ電流-電圧特性がオーミックになるためであると理解することができる。

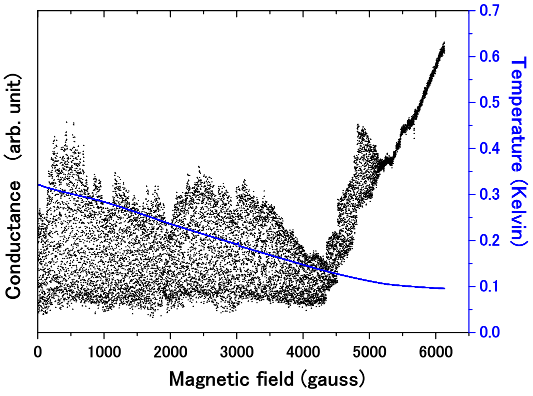


図 4.5: 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンスの変化 (測定全体)。磁場掃印は高磁場から低磁場方向へである。

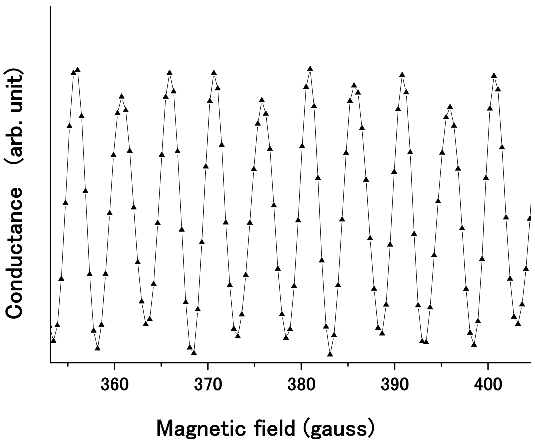


図 4.6: 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンスの変化 (350-400gauss)

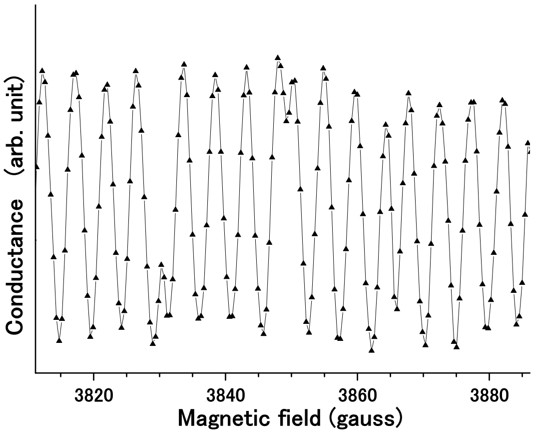


図 4.7: 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンスの変化 (3810-3885gauss)

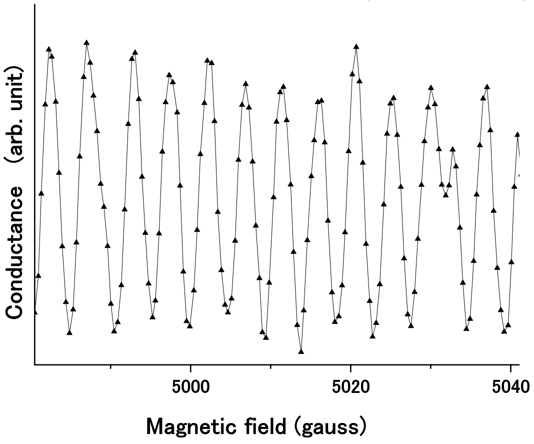


図 4.8: 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンスの変化 (4990-5040gauss)

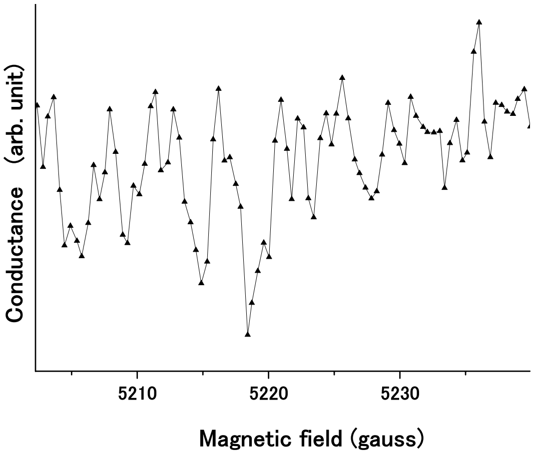


図 4.9: 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンスの変化 (5205-5240gauss)

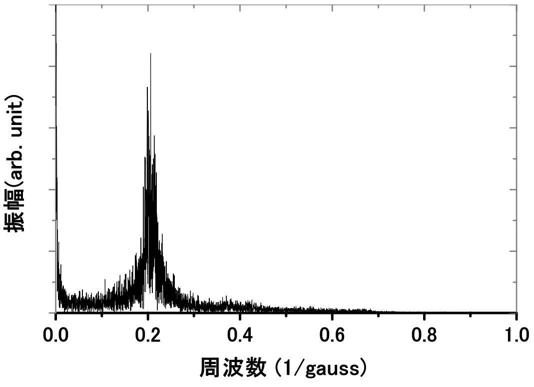


図 4.10: 磁場を SQUID 面に対して垂直に印加したときのコンダクタンス振動のフーリエスペクトル

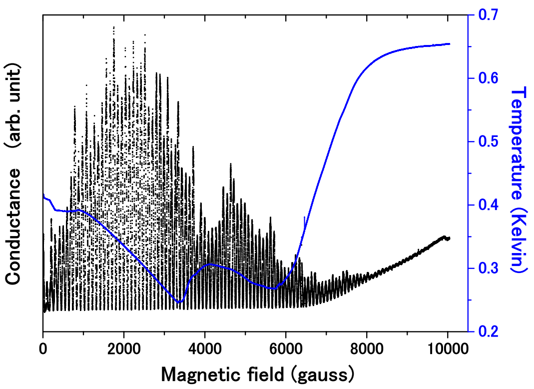


図 4.11: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (測定全体)。磁場掃印は低磁場から高磁場方向へである。

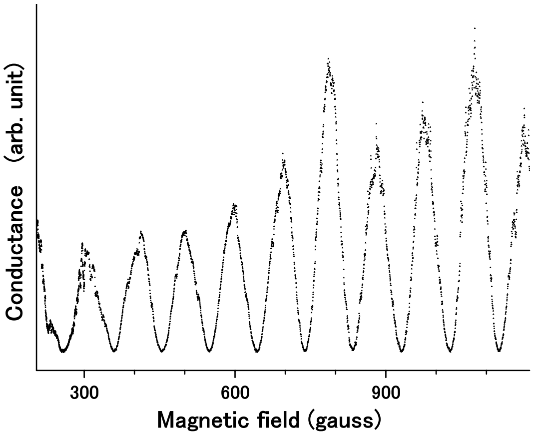


図 4.12: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (300-1100gauss)

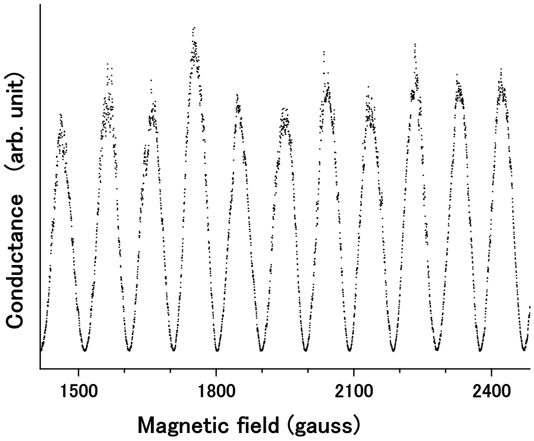


図 4.13: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (1500-2400gauss)

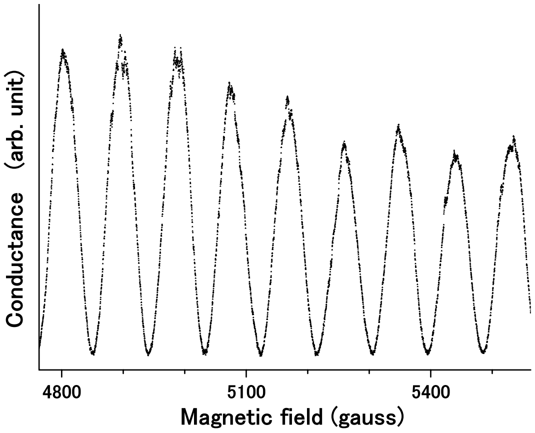


図 4.14: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (4800-5500gauss)

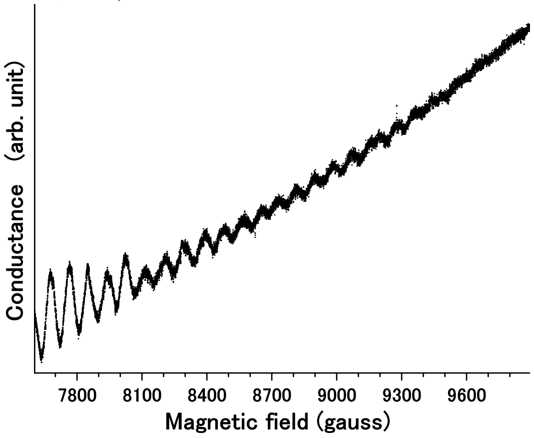


図 4.15: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (7600-9900gauss)

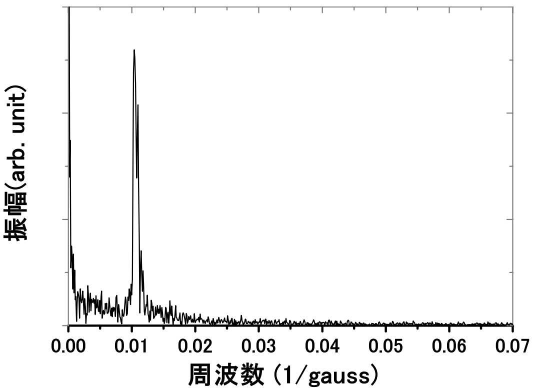


図 4.16: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンス振動のフーリエスペクトル (1)

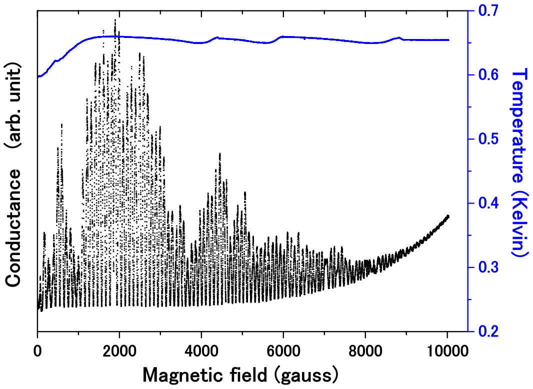


図 4.17: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (測定全体)。磁場掃印は高磁場から低磁場方向へである。

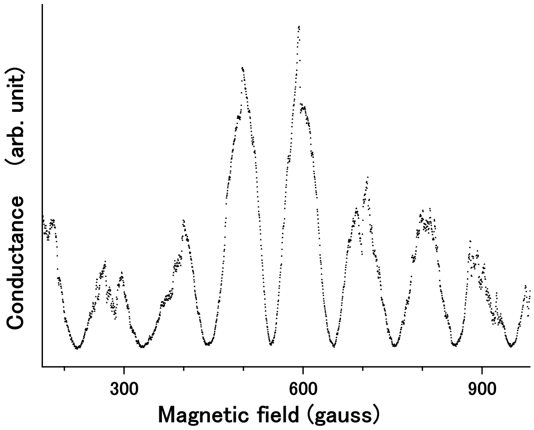


図 4.18: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (200-1000gauss)

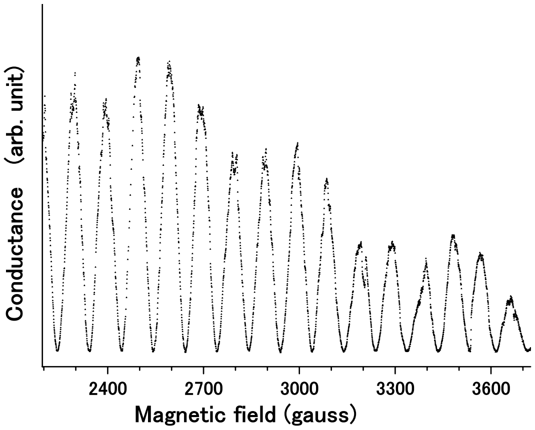


図 4.19: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (2200-2700gauss)

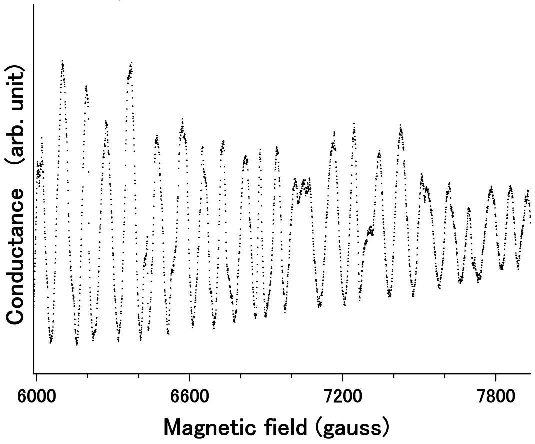


図 4.20: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (6000-7800gauss)

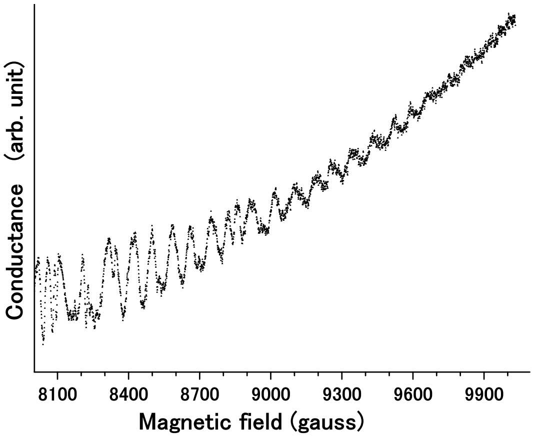


図 4.21: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンスの変化 (8100-10000gauss)

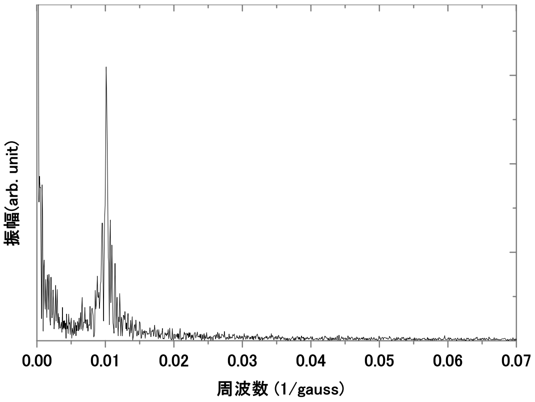


図 4.22: 磁場を SQUID 面に対して平行に印加したときのコンダクタンス振動のフーリエスペクトル (2)

第5章

まとめ

本研究ではリソグラフィー技術により面積が $4\mu m^2$ 程度のトンネル接合型 dc-SQUID 作製を行い、その磁場応答を調べた。

まず、SQUID の電流-電圧特性について調べ、　トンネル接合の電気容量が小さいこと、　トンネル接合のトンネル抵抗が大きいためにジョセフソン結合エネルギーが小さいこと、　ジョセフソン結合エネルギーに比べて熱雑音電流が大きいことが原因でゼロバイアス付近でも SQUID は電圧状態にあることを確認した。また、ゼロバイアス付近のコンダクタンスは周期的に振動し、その振動周期は臨界電流が振動する通常の SQUID で期待される周期と一致することを確認した。

また、スイッチングポイント付近での消費電力がブリッジ型マイクロ SQUID に比べ 8 桁小さくなることを示した。

そして、コンダクタンスが周期的に振動する点にバイアス電圧を固定しながら　掃引する磁場を SQUID に垂直に印加、　平行に印加、の 2 通りについてコンダクタンスの振動を観測した。力学的な考察から予想できるように、薄膜に対して磁場を垂直に印加する場合よりも平行に印加する場合の方が超伝導のエネルギーが小くなり臨界磁場も大きくなる。それを実証するように、コンダクタンスの振動は SQUID 面に対して平行に印加した場合の方が高磁場まで残った。このコンダクタンスの振動はアルミニウムの超伝導臨界磁場付近まで持続した。これは、アルミニウムの超伝導的性質が失われ電流-電圧特性がオーミックになることがコンダクタンスの振動を失わせる原因であることを示すものである。また通常の SQUID と比べて、このトンネル接合型マイクロ SQUID ははるかに広い磁場領域で感度をもつものであることを確かめた。

付録 A

Fermiの黄金律

Fermi の黄金律 (Fermi's golden rule) は量子力学の中で最も有用な道具の一つである。黄金律は遷移頻度、すなわち粒子が摂動によって、ある状態から別の状態に散乱される頻度を求める一般的な公式を与える。ここでは時間に依存しない静的なポテンシャルによる散乱を取り扱うことにする。このひとつの例としては、結晶中の不純物原子による散乱がある。

粒子のハミルトニアン $\hat{H}$ が時間に依存せず正確に解くことのできる非摂動部分 $\hat{H}_0$ と、$t=0$ に導入される小さな摂動部分 $\hat{V}(t)$ に分割されるものと仮定する。$\hat{H}_0$ の固有状態を ϕ_i 固有エネルギーを ε_i とする。摂動が導入される前には、電子が初期状態 i にあるとすると、そのときの時間に依存する波動関数は

$$\Psi(t) = \Phi_i(t) = \phi_i \exp\left(-\frac{i\varepsilon_i t}{\hbar}\right) \tag{A.1}$$

である。$t \geqq 0$ に関しては、次式を解かなければならない。

$$\hat{H}\Psi(t) = (\hat{H}_0 + \hat{V}(t))\Psi(t) = i\hbar\frac{\partial}{\partial t}\Psi(t) \tag{A.2}$$

境界条件は $t=0$ で $\Psi(0) = \Phi_i(0)$ である。固有状態 $\Psi(t)$ を非摂動系の波動関数で展開すると

$$\Psi(t) = \sum_j a_j(t)\Phi_j(t) \tag{A.3}$$

とかける。ここで $a_j(t)$ は時刻 t において電子が状態 j にある確率振幅で、初期値は $a_j(t=0) = \delta_{ij}$ である。展開式 (A.3) を Schrödinger 方程式 (A.2) へ代入すると

$$\sum_j a_j(t)\hat{V}(t)\phi_j \exp\left(-\frac{i\varepsilon_j t}{\hbar}\right) = i\hbar\sum_j \frac{da_j(t)}{dt}\phi_j \exp\left(-\frac{i\varepsilon_j t}{\hbar}\right) \tag{A.4}$$

となる。ここで、$\Phi_j(t)$ が $\hat{H}_0$ の時間依存する Schrödinger 方程式であることを利用し、$\Phi_j(t)$ の表式をあらわに書き下した。両辺に左から ϕ_f^* をかけて空間積分を行うと

$$\frac{da_f(t)}{dt} = \frac{1}{i\hbar}\sum_j a_j(t)V_{fj}(t)\exp\left(\frac{i\varepsilon_{fj}t}{\hbar}\right) \tag{A.5}$$

が得られる。ここで $\varepsilon_{fj} = (\varepsilon_f - \varepsilon_j)$ は、状態 f と状態 j のエネルギー差である。式 (A.5) は Schrödinger 方程式と等価であり、完全に正確である。ここから近似を施すことになる。ゼロ次近似では $\hat{V}$ をまったく無視すればよく、$a_j(t) = \delta_{ij}$ となる。これを式 (A.5) の右辺に用いて、1 次近似の結果を得る。

$$\frac{da_f(t)}{dt} = \frac{1}{i\hbar}V_{fi}(t)\exp\left(\frac{i\varepsilon_{fi}t}{\hbar}\right) \tag{A.6}$$

ここで、$f \neq i$ ならば $t=0$ のとき $a_f = 0$ であることを用いて両辺積分すると

$$a_f(t) = \frac{1}{i\hbar}\int_0^t V_{fi}(t')\exp\left(\frac{i\varepsilon_{fi}t'}{\hbar}\right)dt' \tag{A.7}$$

が得られる。これが時刻 t に電子の状態が f になる確率振幅を表す Fermi の黄金律の一般的な表式である。この近似の前提として、遷移頻度は低く、初期状態はほとんど満たされており、終状態はほとんど空に近いことが仮定されている。

この段階では $\hat{V}(t)$ の時間依存性については、何も仮定していない。これを定数としてみよう。V_{fj} を積分の外に出すことができ

$$
\begin{aligned}
a_f(t) &= \frac{V_{fi}}{i\hbar}\int_0^t \exp\left(\frac{i\varepsilon_{fi}t'}{\hbar}\right)dt' \\
&= -i\exp\left(i\frac{\varepsilon_{fi}}{2\hbar}t\right)V_{fi}\frac{\sin\frac{\varepsilon_{fi}}{2\hbar}t}{\frac{\varepsilon_{fi}}{2}}
\end{aligned}
\tag{A.8}
$$

となる。電子を終状態において見出す確率は、

$$
\begin{aligned}
|a_f(t)|^2 &= |V_{fi}|^2\frac{t^2}{\hbar^2}\left[\frac{\sin\frac{\varepsilon_{fi}}{2\hbar}t}{\frac{\varepsilon_{fi}}{2\hbar}t}\right]^2 \\
&\xrightarrow{t\to\infty} \frac{2\pi}{\hbar}|V_{fi}|^2\delta(\varepsilon_{fi})t
\end{aligned}
\tag{A.9}
$$

となる。これは時間に対して正比例しているので、状態 i から状態 f への遷移頻度は

$$
W_{fi} = \frac{2\pi}{\hbar}|V_{fi}|^2\delta(\varepsilon_f - \varepsilon_i) \tag{A.10}
$$

という定数として与えられる。これは Fermi の黄金律のもうひとつの表現である。終状態のエネルギーは初期状態のエネルギーと一致しなければならないが、エネルギー保存が正確に満たされるのは長時間の極限においてのみである。

δ 関数を含まない形の別の黄金律の式もしばしば用いられる。”特定の”初期状態からの散乱を考える代わりに、式 (A.10) の和をとって、”任意の”初期状態から同じ終状態へ遷移する頻度を得ることができる。

$$
\frac{2\pi}{\hbar}\sum_i |V_{fi}|^2\delta(\varepsilon_f - \varepsilon_i) \tag{A.11}
$$

δ 関数 (現実には微小な広がりを持つものと考える) によって、和に寄与する状態は ε_f 近傍のエネルギー値を持つものに限られる。このように和に寄与する各状態に関して行列要素が互いに近い値になるものと仮定すると、行列要素を和の外に出して、

$$
\sum_i \delta(\varepsilon_f - \varepsilon_i) = N(\varepsilon_f) \tag{A.12}
$$

とすることができる。これは状態密度の定義と見ることができる。よって遷移頻度は、

$$
W_{fi} = \frac{2\pi}{\hbar}|V_{fi}|^2N(\varepsilon_f)\ ,\ \varepsilon_f = \varepsilon_i \tag{A.13}
$$

となる。この形の Fermi の黄金律の公式は式 (A.10) と完全に等価なものといってよい。なぜなら δ 関数は積分の中で意味を持つからである。導出の過程で、Fermi の黄金律 (A.13) が使えるのは初期状態と終状態が連続準位の中にある場合であるときのみであることがわかった。さもなければ、状態密度が定義できず、δ 関数が意味を持たなくなる。

なお、この章は [19] を参考とした。

付録 B

薄膜超伝導体の諸特性

多くの金属は薄膜にすることにより、バルク金属と違った特性を示すことがわかっている。ここでは本研究で使用している Al や他の金属の臨界温度 T_c, 臨界磁場 H_c が薄膜化によりどのように変化するか解説する。[4] を参考にした。

臨界温度 T_c

Al,Sn,In,Be などの金属は薄膜化によってバルク金属より T_c が高くなる。一方で、Pb,Nb,Ta,V などは薄膜化によって T_c が低くなる。図 B.1 に Al,In,Pb,Nb 薄膜の T_c の厚さ依存性を示す。

臨界磁場 H_c

超伝導状態にある物体は外部磁場を遮蔽し磁束が内部に侵入するのを阻止しようとする[1]。つまり超伝導体に外部磁場 H を印加すると、磁束線は超伝導体を迂回せねばならず、自由エネルギーは $(1/2)\mu_0 H^2$ だけ増加する。H が増大して自由エネルギーが常伝導状態の自由エネルギーと等しくなると、超伝導状態が壊れて磁束が侵入したほうが全エネルギーとしては小さくなり、超伝導状態から常伝導状態に遷移することになる。このときの磁場を臨界磁場 H_c という。

London によれば超伝導体表面に平行に磁束密度 B_0 を加えると、表面から深さ x での磁束密度は

$$B(x) = B_0 \exp\left(-\frac{x}{\lambda_L}\right) \tag{B.1}$$

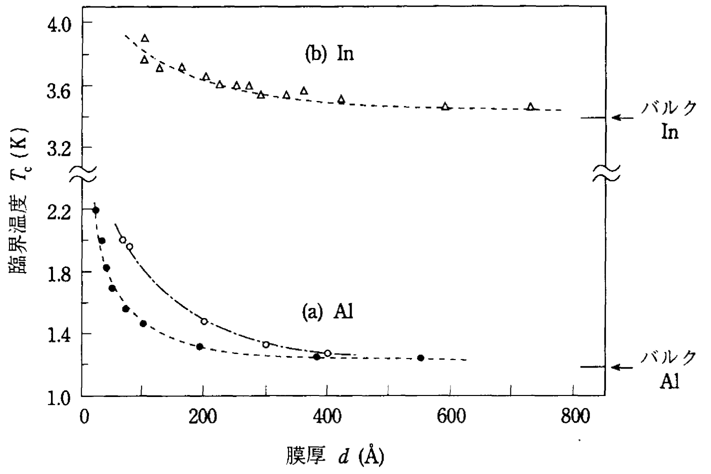
となる。すなわち、磁束密度は表面から London の侵入長 λ_L の距離まで侵入する。λ_L は Al、Sn、Pb などでは約 300 Åであり、バルク超伝導内部では磁束はほとんど 0 で完全反磁性を示す。

薄膜の場合、膜厚 d が λ_0 と同程度以下では磁束を排除する割合がバルクの場合に比べて小さくなるので臨界磁場 H_c は増大する。GL 理論によれば、膜面に平行な磁場に対する臨界磁場 H_{cf} は $d \ll \lambda_L$ で

$$\frac{H_{cf}}{H_{c0}} \sim 2.31\sqrt{\frac{\xi\lambda_L^2}{d^3}} \tag{B.2}$$

と与えられる。つまり H_{cf} は膜厚により $d^{-3/2}$ で変化することになる。ここで H_{c0} はバルクでの臨界磁場の値である。図 B.2 に Al 蒸着膜の臨界磁場 H_{cf} の膜厚依存性を示す。200〜2000 Åでは式とよく一致していることがわかる。

[1] Meissner effect



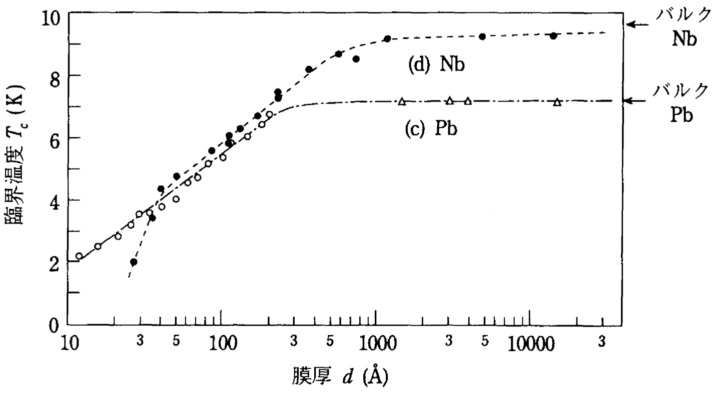


図 B.1: 超伝導薄膜の臨界温度の膜厚依存性。(a) Al (●：Chubov *et al.*、○：Townsend *et al.*) (b) In (△：Vogel and Garland) (c) Pb (Strongin *et al.*、△：Caswell *et al.*) (d) Nb (●：Wolf *et al.*) 引用元は [4] を参照のこと。

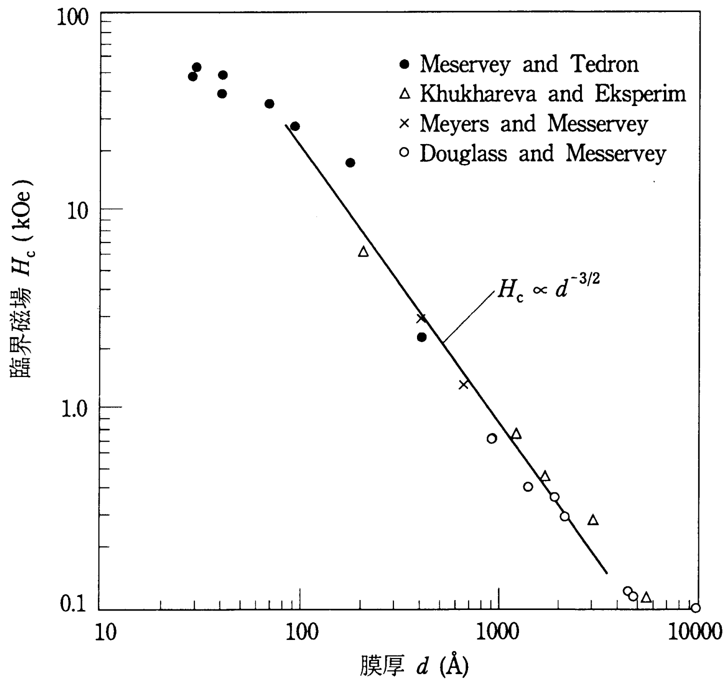


図 B.2: Al 膜の臨界磁場の膜厚依存性。[5] から引用。

付録 C

記号一覧

A / S	*Area*
$\vec{\boldsymbol{A}}$	*Vector potential*
B	*Magnetic field*
C	*Capacitance / Path of integration*
E	*Electric field / Energy*
$e(>0) = 1.60217733 \times 10^{-19}$ [C]	*Unit charge(electron charge is* $-e$*)*
$f(\varepsilon)$	*Fermi – Dirac distribute function*
$f_J = \dfrac{2eV}{h} = 483.60$ [MHz per 1μV]	*Josephson frequency*
$G = R^{-1}$	*Conductance*
$\hat{H}$	*Hamiltonian*
$\hbar = \dfrac{h}{2\pi} = 1.05457148 \times 10^{-34}$ [J $\cdot$ s]	*Planck constant*
I	*Electric current*
I_c	*Critical current of superconductor*
i	*Normalized current / Imaginary unit*
J	*Electric current density*
K	*Coupling constant between superconductors*
$\vec{\boldsymbol{k}}$	*Wave number vector*
$k_B = 1.3806503 \times 10^{-23}$ [J/K]	*Boltzmann constant*
L	*Self inductunce*
N	*Density of electron*
n	*Density of cooper pair / Integer*
P_T	*Tunneling probability*
Q	*Electric charge*
R	*Electric resistance*
$R_q = \dfrac{h}{2e^2} \sim 12.9$ [kΩ]	*Quamtum resistance*
T	*Temperature*
U	*Potential energy*
V	*Electric voltage*
$\hat{V}$	*Perturbative hamiltonian*

$\beta_c = \dfrac{\omega_c C}{G}$	*Stewart − McCumber parameter*
Δ	*Superconducting energy gap*
$\delta(x)$	*Dirac delta function*
ε	*Energy*
θ	*Phase of the superconductor*
μ	*Energy of the superconductor*
τ	*Normalized time / Transition duration*
Φ	*Magnetic Flux*
$\Phi_0 = \dfrac{h}{2e} = 2.0679 \times 10^{-15}$ [Wb]	*Flux quamtum*
φ	*Gauge invariant phase difference of the superconductor*
χ	*Arbitrary scalar function*
Ψ	*Wave function*
$\omega_c = \dfrac{2eI_c}{\hbar G}$	*Josephson anglar frequency*

参考文献

[1] L.Solymar. *Superconductive Tunneling and Applications*. Chapmann and Hall Ltd., 1972.

[2] C.D.tesche and J.Clarke. dc squid:noise and optimization. *Low Temp. Phys*, Vol. 29, p. 301, 1977.

[3] 株式会社エリオニクス. 電子描画装置 ELS-6600 取扱説明書, 第五版.

[4] 吉田貞史. 応用物理工学選書 3 薄膜. 培風館, 1990.

[5] R.Meservey and P.M.Tedrow. Properties of very thin aluminum films. *J.App.Phys.*, Vol. 42, p. 51, 1971.

[6] W.Wernsdorfer. Classical and quantum magnetization reversal studied in nanometer-sized particles and clusters. *Adv.Chem.Phys.*, Vol. 118, p. 99, 2001.

[7] I.GIaever. Electron tunneling between two superconductors. *Phys.Rev.Lett.*, Vol. 5, p. 464, 1960.

[8] I.Giaever and K.Megerle. Study of superconductors by electron tunneling. *Phys.Rev.*, Vol. 122, p. 1101, 1961.

[9] I.GIaever. Energy gap in superconductors measured by electron tunneling. *Phys.Rev.Lett.*, Vol. 5, p. 147, 1960.

[10] J.Nicol, S.Shapiro, and P.H.Smith. Direct measurement of the superconducting energy gap. *Phys.Rev.Lett.*, Vol. 5, p. 461, 1960.

[11] B.D.Josephson. Possible new effects in superconducting tunneling. *Phys.Lett.*, Vol. 1, p. 251, 1962.

[12] P.W.Anderson and J.M.Rowell. Probable observation of the josephson supersonducting tunneling effect. *Phys.Rev.Lett.*, Vol. 10, p. 230, 1963.

[13] 猪木慶治, 川合光. 量子力学 I,II. 講談社サイエンティフィク, 1994.

[14] 古川静二郎, 浅野種正. 微細加工入門. オーム社, 1989.

[15] 麻蒔立男. 超微細加工の基礎ー電子デバイスプロセス技術ー. 日刊工業新聞社, 第二版, 2001.

[16] V.Ambegoakar and A.Baratoff. Tunneling between superconducters. *Phys.Rev.Lett.*, Vol. 10, p. 486, 1963.

[17] V.Ambegoakar and A.Baratoff. Erratum. *Phys.Rev.Lett.*, Vol. 11, p. 104, 1963.

[18] 川畑有郷. 新物理学シリーズ 31 メゾスコピック系の物理学. 培風館, 1998.

[19] J.H. デイヴィス, 樺沢宇紀 (訳). 低次元半導体の物理. シュプリンガーフェアラーク東京, 2004.

[20] 御子柴宣夫, 鈴木克生. 超伝導物理入門. 培風館, 1995.

[21] 大塚洋一. *SQUID*, 第 1 章, p. 1. シリーズ物性物理の新展開 II-SQUID,SOR, 電子分光-. 丸善, 1996.

[22] Charles Kittel. 固体物理学入門 上, 下. 丸善, 第 7 版.

[23] A.A.Abrikosov. 金属物理学の基礎 上・下. 吉岡書店, 1995.

[24] 岩渕修一. パリティ物理学コース クローズアップ メゾスコピック系の物理. 丸善, 1998.

[25] 難波進. メゾスコピック現象の基礎. オーム社, 1994.

[26] 徳山巍. 応用物理学シリーズ 超微細加工技術. オーム社, 1997.

[27] 中野朝安, 星野洋, 小松良策. 微細加工ーサブミクロン素子への展開ー. 東京電機大学出版局, 1989.

謝辞

研究室の一人として本研究を進め、卒業論文としてまとめるにあたりまして多くの方々のお世話になりました。ここに感謝の意を表します。

大塚洋一教授には興味深い研究テーマと恵まれた研究環境を与えてもらいました。また、あらゆる場面において常に的確な助言をいただきました。心より御礼申し上げます。

神田晶申講師、大木泰造講師には研究生活全般に対してアドバイスをしていただくとともに、実験についての助言もいただきました。ここに御礼申し上げます。

宮崎久生さん、迫坪行広さん、和田充洋さんには実験機器の操作法を懇切丁寧に指導していただきました。また、宮崎久生さんには物理的な議論をしていただき、非常に有意義な時間を過ごさせていただきました。蛇足ですが、 宮崎さん、迫坪さんには趣味の自転車についてもアドバイスをいただきました。研究のいい息抜きになりました。

共同研究者である宮川佳子さんには研究生活全面でお世話になりました。迷惑をかけたのは数知れずです。ありがとうございました。

暖かい雰囲気で迎えてくれた大塚研究室の皆様に感謝いたします。

最後に、いままで自分の勝手を許してくれた家族のみんなに感謝いたします。